

EUR 2641.d, f, e

EUROPEAN ATOMIC ENERGY COMMUNITY - EURATOM

BESCHLEUNIGERTARGETS BESTIMMT ZUR
HERSTELLUNG VON NEUTRONEN

CIBLES POUR ACCÉLÉRATEURS DESTINÉES
A LA PRODUCTION DE NEUTRONS

ACCELERATOR TARGETS DESIGNED FOR
THE PRODUCTION OF NEUTRONS

1966



Proceedings of the Meeting held at Grenoble (France)
on June 21-22, 1965

Contract Euratom/University of Liège No. 050-63-8 RISB

AVANT-PROPOS DES ORGANISATEURS CONCERNANT LA
PUBLICATIONS DES ACTES DE CETTE REUNION DE TRAVAIL

Les actes de cette réunion de travail relative aux cibles pour accélérateurs destinées à la production de neutrons sont présentés dans leur forme originale comme les discussions se sont déroulées.

Toutefois, certains enchaînements entre les questions et les réponses ont dû être modifiés étant donné certaines corrections apportées par les auteurs lors de l'élaboration du texte définitif. Le sens et l'étendue des discussions n'ont toutefois pas été altérés.

x

x

x

Les organisateurs tiennent à remercier vivement les auteurs, qui, dans les délais demandés, nous ont retourné les textes corrigés afin d'assurer une publication rapide de ces comptes rendus.

Les organisateurs sont particulièrement reconnaissants à tous ceux qui ont permis le déroulement parfait de ces deux journées, notamment les interprètes, les techniciens chargés de l'enregistrement des communications, les dactylos ainsi que les services du C.I.D. qui nous ont permis d'éditer ces comptes rendus dans les temps les plus courts.

x

x

x

L'EURATOM assurera la publication de ces actes en version anglaise dans les prochains mois.

x

x

x

Organisateur de ces journées de travail :

- S. GODAR - Groupe Radioisotopes - Direction Recherche et Enseignement - EURATOM

en collaboration avec les services des Accélérateurs, des Radioéléments et des Relations Extérieures du Commissariat à l'Energie Atomique-Centre de Grenoble -

REUNION DE TRAVAIL SUR LES CIBLES POUR ACCELERATEURS
DESTINEES A LA PRODUCTION DE NEUTRONS

Grenoble - Centre d'Etudes Nucléaires - 21 et 22 Juin 1965

Liste des Participants.

ALLEMAGNE

M.R. BILABEL	Gesellschaft für Kernforschung Zyklotron-Laboratorium Postfach, 947 <u>Karlsruhe</u>
M.G. CHRISTALLER	Gesellschaft für Kernforschung Zyklotron-Laboratorium Postfach, 947 <u>Karlsruhe</u>
M.E. FRETWURST	Institut für Experimentalphysik, Fungiusstrasse 9 <u>2, Hamburg 36</u>
M.R. GUNTHER	BATTELLE-INSTITUT e.V. Postfach 1337, <u>Frankfurt (Main) W.13</u>
M.M. MATHEY	Technical Measurement Corp.GmbH Mainzer Landstrasse 51 <u>6, Frankfurt (Main)</u>
M.K.H. PELSTER	T.M.C. - GmbH Mainzer Landstrasse 51 <u>Frankfurt (Main)</u>
M.K.H. PETER	Leybold-Hochvakuum-Anlagen GmbH HVEC Sales Bonner Strasse 504 <u>5, Köln - Bayenthal</u>
M.G. PHILIPP	Phys.Institut der Universität <u>Erlangen-Nürnberg</u>
M.K.A. SCHMIDT	Gesellschaft für Kernforschung mbH Postfach 947 <u>Karlsruhe</u>
M.L. WIESNER	Gesellschaft für Kernforschung mbH Postfach, 947 <u>Karlsruhe</u>

ANGLETERRE

M.E.E. BARRAT	Rutherford Laboratory Royal Military College of Science <u>Shrivenham, Swindon, Wiltshire</u>
M.D. COSSUTTA	Multivolt Limited, 26 Loppets Road <u>Crawley, Sussex</u>
M.A.L. GRAY	Plessey (U.K.) Limited Martin Road <u>Havant, Hants</u>
M.S.E. HUNT	University of Aston Birmingham College of Advanced Technology Gosta Green <u>Birmingham</u>
M.K.W. LLOYD	Mullard Research Labs. <u>Redhill, Surrey</u>
M.P.D. LOMER	S.E.R.L. <u>Baldock, Herts</u>
M.W. D. OWEN	A.W.R.E. <u>Aldermaston</u>
M.J.L. PERKIN	Atomic Weapons Research Establish- ment <u>Aldermaston, Berks</u>
M.T.B. PIERCE	A.E.R.E. Harwell <u>Nr. Didcot, Berkshire</u>
M.A.A. SMALES	A.E.R.E. <u>Harwell, Berkshire</u>

AUTRICHE

M.H. FABIAN	Institut für Radiumforschung und Kernphysik der Oesterr. Akademie der Wissenschaften Boltzmanngasse 3 <u>Wien IX</u>
M.H. MUNZER	Institut für Radiumforschung und Kernphysik der Oesterr. Akademie der Wissenschaften Boltzmanngasse 3 <u>Wien IX</u>

BELGIQUE

M.F.C. ADAMS	Institut voor Nucleaire Wetenschappen Proeftuinstraat, <u>Gent</u>
M.D. DE SOETE	Idem
M.P. FINET	Institut Interuniversitaire des Sciences Nucléaires 11, rue Brisselot <u>MONS</u>
M.J. GOVAERTS	Institut de Physique et de Chimie Nucléaires, Université de Liège, 9, Place du XX Août <u>Liège</u>
M. GUILLAUME	Idem
M. J. HOSTE	Instituut voor Nucleaire Wetenschappen Proeftuinstraat <u>Gent</u>
M. J. PETERS	Institut de Physique et de Chimie Nucléaires, Université de Liège, 9, Place du XX Août <u>Liège</u>
M.G. ROBAYE	Laboratoire Van de Graaff Université de Liège Quai Roosevelt 1A <u>Liège</u>
M.A. SPEECKE	Laboratorium voor Analytische Chemie Rijksuniversiteit <u>Gent</u>
M.M. STIEVENART	Belgonucléaire Département Physique des Réacteurs 35, rue des Colonies <u>Bruxelles - 1</u>
M.L. WINAND	Laboratoire Van de Graaff Université de Liège Quai Roosevelt 1A <u>Liège</u>

ETATS - UNIS

M.M. CUYPERS	Texas A and M University Activation Analysis Research Laboratory <u>College Station, Texas</u>
M.A.A. FLEISCHER	The Cyclotron Corp. 950 Gilman St. <u>Berkeley, Calif.</u>
M.H. HOLLISTER	Kaman Nuclear <u>Colorado Springs, Colo.</u>
M.I.L. MORGAN	Texas Nuclear Corp. P.O. Box 9267 <u>Allandale Station, Austin, Texas</u>
Miss. K.I. PERRY	SAR - CEA - CEN-G. <u>Grenoble (Isère)</u>
M.R.K. SMITH	Los Alamos Scientific Laboratory, University of California, P.O. Box 1663 <u>Los Alamos, New Mexico</u>
M.E. STEELE	General Atomic Activation Analysis Department <u>San Diego, Calif.</u>
M.R. WAINERDI	Texas A and M University Activation Analysis Research Labora- tory <u>College Station, Texas</u>

EURATOM

M.C. ALLARD	EURATOM - B.C.M.N. <u>Geel</u>
M.O. DRUKMAN	EURATOM (Stagiaire) Direction Générale Recherche et Enseignement-Groupe Radioisotopes 51, rue Belliard
M.S. GODAR	EURATOM Direction Générale Recherche et Enseignement-Groupe Radioisotopes 51, rue Belliard <u>Bruxelles</u>
M.J. PAULY	C.C.R. EURATOM <u>ISPRA (Varèse)</u>

FRANCE

M. P. ALBERT	Centre de Recherches Métallurgiques CRNS <u>Vitry - sur-Seine</u>
M. G. AUDE	Centre d'Etudes Nucléaires de B.P.269 Grenoble <u>Grenoble, Isère</u>
M. Ph. AUROUX	Laboratoire Central Armement Département PCA/DP, <u>ARCUEIL, Seine</u>
M. J.P. BARTON	Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble, Départ.des Radioéléments B.P. 269 SAR. <u>Grenoble (Isère)</u>
M. R. BARJAU	Faculté des Sciences de Grenoble Laboratoire de Génie Atomique <u>Grenoble (Isère)</u>
Mad.F.J. BERTRAND	CEA - Centre de Limeil Boîte Postale 27 <u>Villeneuve - St.Georges (S.et O)</u>
M. J. BESSON	E.N.S.I. d'Electrochimie et d'Electrométallurgie 39-41, bd.Gambetta <u>Grenoble (Isère)</u>
M. M. BOIVIN	Laboratoire de Chimie Physique Faculté des Sciences <u>Orsay (S. & O.)</u>
M. Ch. BONDY	L'Atome Industriel Laboratoire de Radiochimie CENG B.P. 269 <u>Grenoble (Isère)</u>
M. R. BOURION	C.S.F. Division Tubes Electroniques 55, rue Greffulhe, <u>Levallois-Perret (Seine)</u>
Mme. G. BREYNAT	Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble Section des Accélérateurs B.P. 269 <u>Grenoble (Isère)</u>
M. J. CAUCHETIER	SODERN - LEP - 23, rue du Retrait <u>Paris 20e</u>
M. R. CORNUET	CEA - CENG - SAR B.P. 269 <u>Grenoble (Isère)</u>

FRANCE

8. -

M. G. COSTA	Centre de Recherches Nucléaires de Strasbourg - Cronembourg 2, rue du Loess <u>Strasbourg - Cronembourg</u>
M. H. DILLEMANN	Société Anonyme de Machines Electro- statiques - S.A.M.E.S. 21, rue Jean Macé <u>Grenoble</u>
M.M. DUBUS	Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble Section des Accélérateurs B.P. 269 <u>Grenoble (Isère)</u>
M. Ch. ENGELMANN	SRMPC - Département de Métallurgie CEN - <u>SACLAY</u>
Mme. L. FERREIRA	C.N.E.T. 3, av. de la République, <u>Issy-lez-Moulinaux</u>
M. C. GERARDIN	CRN - Basses énergies - 2, rue du Loess <u>Strasbourg - Cronembourg</u>
M. GERBIER	Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble Section des Accélérateurs B.P. 269 <u>Grenoble (Isère)</u>
M. A. HUCK	Centre de Recherches Nucléaires Département Chimie Nucléaire <u>Strasbourg-Cronembourg (Bas-Rhin)</u>
M. R.M. JEAN	CSF B.P. 10 <u>Orsay (S. et O.)</u>
M. JOUANIGET	C.E.A., 29 - 33, rue de la Fédération <u>Paris 7^{me}</u>
M.L. SOUQUET-BASIENGE	CEA - Centre de Limeil Boîte Postale 27 <u>Villeneuve - St.Georges (S et O)</u>
M.J. LAVERLOCHERE	C.E.N. Grenoble Section d'Application des Radioéléments B.P. 269 <u>Grenoble (Isère)</u>
M. M. LEVY	Laboratoire Central Armement Département PCA/DP <u>Arcueil, Seine</u>

FRANCE

M. A.F. MANIN	Dept. Radioéléments CEA - <u>Saclay</u> (S.et O.)
M. S. MAY	Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay Département Physico-Chimie B.P. N° 2 <u>Gif-sur-Yvette</u> (S. et O.)
M. J.P. MEYER	Centre de Recherches Nucléaires Département de Chimie Nucléaire <u>Strasbourg-Cronenbourg</u>
M. J.Ch. OBERLIN	Centre de Recherches Nucléaires Van de Graaff 3 MeV 2, rue du Loess <u>Strasbourg-Cronenbourg</u> (Bas Rhin)
M.J. PERDIJON	SAMES - 29, rue Jean Macé <u>Grenoble</u> (Isère)
M. J. REROLLE	CSI - CEPEC domaine de Corbeville <u>Orsay</u> (S. et O.)
M. ROCHE	C.E.A. 29-33, rue de la Fédération <u>Paris 7^{me}</u>
M. SARRAILH	Laboratoire Electronique Appliquée 3, rue Descartes <u>Limeil-Brevannes</u> (S. et O.)
M. R. SELZ	CRN - Basses énergies 2, rue du Loess <u>Strasbourg-Cronenbourg</u>
M. Cl. TEISSIER	Centre de Recherches Nucléaires 2, rue du Loess <u>Strasbourg-Cronenbourg</u> (Bas Rhin)
M.M. VALENTIN	CEA - Centre V. BP 63 - <u>Montrange</u> (Seine)
M. J. VALLON	Société SODERN 78 Bis, Rue Villiers de l'Isle Adam <u>Paris XXème</u>
M. E. VERNIN	SAMES <u>Grenoble</u> (Isère)

ISRAEL

M. CH.G. MILLER

Atomic Energy Commission
Soreg Nuclear Research Centre
REHOVOTHPAYS - BAS

M. J.J.BROERSE

Radiobiological Institute T.N.O.
151 Lange Kleiweg
Rijswijk

M. E. BRUNINX

Philips Research Laboratories
Stryp
Eindhoven

M. H. DAS

N.V. Philips-Duphar
Hemdijk 15-16
Amsterdam

M. P. KUIN

National Laboratory
N.V. Philips
Kastanjelaan
Eindhoven

M. K.P. MELIA

High Voltage Eng.Co.
Postbus 99,
Amersfoort

M.O. REIFENSCHWEILER

Philips Research Laboratory
Eindhoven

M. J. RETHMEIER

Natuurkundig Laboratorium der
Vrije Universiteit
De Lairese Str. 174
Amsterdam - Z.SUEDE

M.P. MALMBORG

The Gustaf Werner Institute
University of Upsala
Nuclear Chemistry Group
UPPSALASUISSE

M. ADLER-BARMET

Emil HAEFELY & Cie. A.G.
Lehenmattsr. 353
4000 Basel

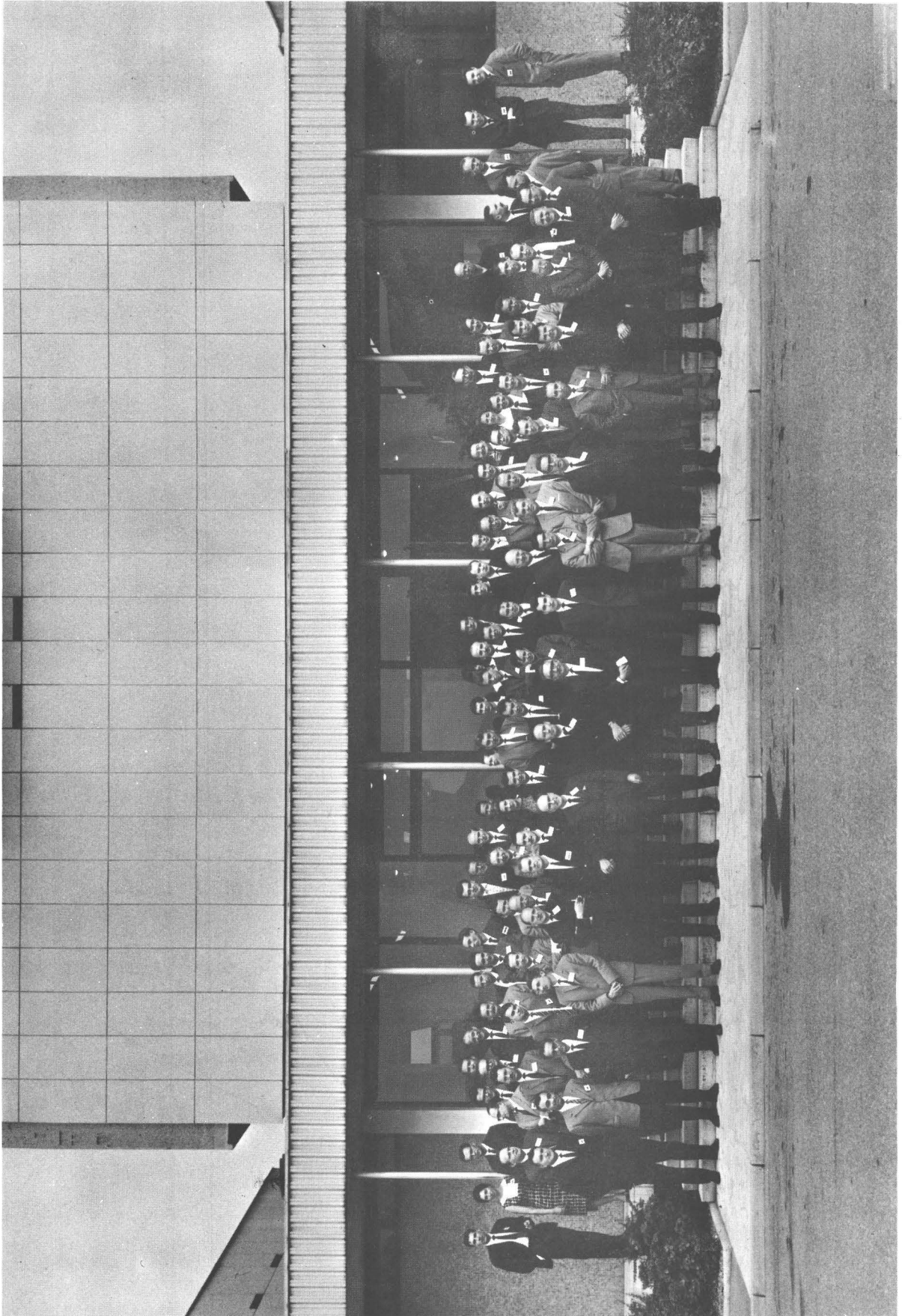
M. INVERNIZZI

United States Radium Corporation
(Europe)
36, av. Krieg
1200 GENEVE

Mlle. G. MODIANO

United States Radium Corporation
(Europe)
Radiation Sources Dept.
36, av. Krieg
1200 GENEVE

PHOTO DES PARTICIPANTS



PROGRAMME DE TRAVAIL

LUNDI - 21 Juin 1965Séance du matin.Début : 9 heures.Président de séance :Monsieur R. CORNUETAdjoints : MM: LAVERLOCHERE et GÖDAR

- 1. Allocution de bienvenue par Mr. BALLIGAND, sous-directeur du Centre Nucléaire de Grenoble.
- 2. Exposé de Mr. S. GÖDAR - Groupe Radioisotopes de la Direction Recherche et Enseignement sur les "Activités de l'EURATOM relatives à la production de neutrons au moyen d'accélérateurs de particules."
- 3. Introduction sur le programme de travail de la conférence par Mr. R. CORNUET - chef de la Section des Applications des Radioéléments Saclay et Grenoble -
- 4. Communication du Professeur J. BESSON, directeur de l'Ecole Nationale Supérieure de l'Electrochimie et d'Electrometallurgie de Grenoble :
" Thermodynamique et cinétique des systèmes métal-hydrogène ".
- 5. Communication de Mr. GERBIER - chef de la Section des Accélérateurs du Centre Nucléaire de Grenoble :
" Possibilités actuelles de production de neutrons rapides pour accélérateurs électrostatiques de basse énergie ".

Discussions.

- 6. Communication de Mr. J.J. BROERSE, du T.N.O. (Pays-Bas)
" Fast neutron irradiations of living cells and intact animals: Inadequacies of existing targets ".

Discussions sur les communications précédentes et sur le point suivant :

I. Cibles tritiées classiques (Zr-Ti)1. Méthodes générales de préparation.

Caractéristiques actuelles des cibles minces ou épaisses.

Fin 12.30h.

LUNDI 21 JUIN 1965

Seance de l'après-midi

Debut 14hrs.

President de seance:

Mr. WINAND

Adjoints: MM. Gerbier et Godar.

Objet des discussions

I. CIBLES TRITIÉES CLASSIQUES (Zr-Ti) (suite)

2. Conditions d'emploi de ces sources

A. Etude des facteurs influençant la durée d'utilisation pratique de ces cibles et le flux de neutrons émis

- 1) Intensité du courant de faisceau.
- 2) Energie de la particule incidente.
- 3) Diamètre du faisceau.
- 3 bis) Répartition du faisceau.
- 4) Température de la cible:
 - a) problème du refroidissement,
 - b) cibles placées obliquement par rapport au faisceau,
 - c) cibles rotatives,
 - d) balayage du faisceau,
 - e) température limite au cours de l'irradiation,
 - f) mesure de la température de la cible,
 - g) cas des points chauds,
 - h) pulvérisation cathodique

Communication de Mrs. FABIAN et MUNZER de l'Institut für Radiumforschung und Kernphysik der Oesterreich. Akademie der Wissenschaften:

"Rotierende Targetkonstruktion"

Communication de Mr. COSSUTA, "Multivolt Ltd."

"Description de la cible fabriquée par la Multivolt Ltd".

Communication de Mr. P.D. LOMER, du SERL
Services Electronics Research Laboratory

" Influence of Sputtering on Target
life-time in neutron generators ".

Communication de Mr. REIFENSCHWEILER,
- Philips Research Laboratories -

" Bestimmung der Zerstäubungsrate von
Titan in abgeschmolzenen Neutronen-
röhren ".

- 5) Contamination de la surface des cibles
par des dépôts (expérience des différents
types de pompes: pompes à diffusion d'huile,
à diffusion de mercure et ioniques).
Utilisation des pièges et baffles;
- 6) Composition du faisceau;
- 7) Nature du faisceau (pulsé ou non pulsé)

Fin : 18 hrs

x

x

x

Monsieur BALLIGAND

Je suis heureux de vous accueillir à Grenoble et de vous souhaiter la bienvenue au nom du Professor Neel, Directeur du Centre Nucléaire de Grenoble, qui malheureusement est retenu aujourd'hui à Paris.

Cette reunion a pour but, dans une première partie de faire le point sur les problèmes de fabrication de cibles pour la production de neutrons avec des accélérateurs et dans une deuxième partie d'étudier les aspects pratiques de l'analyse par activation à l'aide de particules chargées.

De nombreux domaines de recherches fondamentales ou appliquées exigent l'emploi de sources de neutrons présentant des caractéristiques particulières (neutrons pulsés, neutrons pratiquement exempt de rayons gamma, neutrons d'énergie élevée etc.....); caractéristiques qu'on ne trouve pas toujours facilement avec les réacteurs nucléaires. Les utilisateurs de ces sources de neutrons se trouvent aussi bien dans le domaine de la recherche fondamentale, pour la physique ou la chimie nucléaire, la physique du solide ou la biologie, dans le domaines de recherches appliquées; nous citerons simplement l'analyse par activation, la recherche pétrolière, enfin en général l'utilisation de flux de neutrons pulsés.

Pour la plupart de ces recherches, il est extrêmement souhaitable, sinon indispensable que les neutrons puissent être produits à partir de petites machines peu coûteuses, d'entretien facile, mais délivrant néanmoins des flux de neutrons aussi grands que possible.

Il existe de nombreuses réactions produisant des neutrons. Une séance entière sera consacrée à l'étude des cibles correspondantes. Le problème principal pour les utilisateurs et aussi pour les fabricants d'accélérateurs de faible énergie, consiste à trouver des cibles convenables répondant à leurs problèmes.

De sensibles progrès ont été enregistrés ces dernières années, aussi bien dans la qualité des cibles que dans leur technique

d'utilisation: meilleur refroidissement, géométrie d'exploitation mieux adaptée, etc....

La première réunion de travail organisée par Euratom à Liège, les 17 et 18 fév. 1964 avait déjà permis de faire le point sur les études entreprises dans le monde sur ce sujet et de préciser les voies de recherche qui paraissaient les plus intéressantes. La réunion d'aujourd'hui à laquelle sont inscrits de nombreux spécialistes, plus de quatre vingt-dix, venant des principaux pays intéressés aux problèmes, devrait permettre de tirer des conclusions valables. Conclusions qui seront tirées à partir des études effectuées récemment concernant en particulier les supports de terres rares ou de matière plastique.

Bien plus qu'une simple conférence servant à justifier la publication de résultats, il s'agit ici de la mise en commun de l'expérience acquise par chacun des laboratoires représentés, pour tenter de résoudre mieux les multiples problèmes que pose la production de neutrons à partir de machines de faible énergie.

Le centre d'études nucléaires de Grenoble me paraît particulièrement bien choisi pour abriter une telle conférence, étant donné d'une part les études entreprises par le service des accélérateurs en collaboration avec les laboratoires de l'Université, sous la direction de M. le Professeur Besson, dans le domaine de la génération des neutrons; et d'autre part, étant donné le développement important pris dans notre centre par l'analyse par activation.

Je remercie tout particulièrement Monsieur Godar, de la Direction Recherche et Enseignement d'Euratom, qui avait déjà organisé la première conférence et qui s'est dépensé sans compter pour organiser celle-ci.

Je souhaite que vos travaux se déroulent dans les meilleures conditions possibles et que votre séjour à Grenoble soit plaisant. Je passe la parole maintenant à Monsieur Godar.

Monsieur GODAR

Monsieur le Directeur, Mesdames, Messieurs,

Lors de la première réunion relative aux cibles pour accélérateurs, destinées à la production de neutrons, organisée à l'université de Liège en février 1964, le Centre Nucléaire de Grenoble avait proposé sa collaboration pour l'organisation d'une réunion ultérieure. C'est avec joie que nous avons accepté, car elle nous permettait en nous réunissant ici de rendre hommage à ceux qui à Grenoble ont procédé depuis longtemps à des études systématiques fructueuses ayant trait aux cibles de tritium utilisées pour la production de neutrons. Que Monsieur Balligand, représentant Monsieur Neel directeur du Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble, veuille accepter nos vifs remerciements d'avoir bien voulu honorer de son patronage ces journées consacrées d'une part aux cibles pour accélérateurs destinées à la production de neutrons et, d'autre part, aux aspects pratiques de l'analyse par activation au moyen de particules chargées, nous le remercions également, au nom de l'Euratom, pour les paroles très aimables qu'il vient de prononcer.

Nous exprimons également toute notre gratitude à Monsieur le Professeur Besson, à Monsieur Gerbier, Madame Breynat, Messieurs Cornuet et Laverlochère et à leurs assistants ainsi qu'au service des Relations Extérieures du C.E.N.G. qui ont permis l'organisation de cette deuxième réunion internationale.

Nous remercions également les spécialistes étrangers et européens de marquer leur intérêt en participant à cette réunion et en apportant leur contribution personnelle aux discussions que nous souhaitons fructueuses. Lors de la conférence précédente, nous vous avons informé que dans le cadre général du programme relatif aux nouvelles méthodes de production de radioisotopes et de la mise au point ou de développement de méthodes radioactives, l'action du groupe Radioisotopes de la Direction Recherche et Enseignement de l'Euratom, était polarisée sur l'élaboration et l'utilisation des

cibles pour accélérateurs. Cette orientation reste inchangée pour les raisons suivantes:

- 1°) Le problème des cibles est lié au développement de l'analyse par activation,
- 2°) elle permet la réalisation pratique d'un projet propre au groupe concernant la production de radioisotopes,
- 3°) parce que la production de flux très intenses de neutrons, s'avère moins chère au moyen d'accélérateurs que par réacteurs de 10 à 50 Mégawatts.

Dans le cadre du développement de l'analyse par activation, les problèmes relatifs aux cibles de tritium sont à résoudre dans l'immédiat pour l'utilisation en routine des analyses au moyen de neutrons de 14 MeV. Aussi, l'action de l'Euratom s'est concrétisée par la passation de deux contrats de recherches, avec l'Université de Liège en vue de la préparation de nouvelles cibles répondant mieux que les cibles actuelles aux nécessités d'utilisation. En fait, il s'agissait de demander à une équipe de chercheurs de repenser complètement le problème, car la voie classique des cibles à tritures métalliques semblait dans sa conception actuelle une voie difficile à améliorer. Cette conclusion semble être confirmée par la stagnation des performances des cibles conventionnelles, tritium sur zirconium, titane ou terres rares. En fait, actuellement la durée de vie de ces cibles n'a pu être augmentée que par des artifices, tels que cibles tournante ou de grande surface, et cette amélioration ne dépend aucunement de la cible elle-même. Monsieur GUILLAUME vous entretiendra au cours de la deuxième journée des premiers résultats des travaux réalisés à l'Université de Liège dans les laboratoires des professeurs WINAND, GUEBEN et GCVAERTS.

Ces résultats ne portent que sur le premier contrat qui constitue une de trois voies adoptées pour résoudre les problèmes de l'amélioration des cibles de tritium. Dans le cas d'activation, autre que celle effectuée à l'aide de neutrons de 14 MeV et toujours au moyen d'accélérateurs, le problème des cibles se pose

d'une manière plus aigue encore, car en général les réactions productrices de neutrons sont moins prolifiques que la réaction DT ce qui nécessite des faisceaux plus intenses pour obtenir le même flux. Notre point de vue, qui avait été émis il y a plus d'un an au Congrès de Liège, sur l'utilisation possible de neutrons plus ou moins monocinétiques pour l'analyse par activation s'est trouve confirmé aux dernières conférences de Collège Station et de San Diégo. Nul doute dès lors, que l'action concernant les cibles pour accélérateurs soit justifiée. Elle est confirmée en outre par les expériences originales de Ricci à Oak Ridge qui a produit des sources intenses de neutrons en bombardant à l'aide d'un petit cyclotron diverses cibles de lithium, béryllium, bore, carbone et oxygène, au moyen hélions ^3He . Voici d'ailleurs les résultats obtenus pour un courant de faisceau de 100 micro ampères et des énergies de 5 et 10 MeV.

Cibles	5 MeV	10 MeV
Li (Li H)	$4,1 \cdot 10^{10} \text{ n/sec.}$	$2,03 \cdot 10^{11}$
Be	$5,59 \cdot 10^{10}$	$3,78 \cdot 10^{11}$
B	$2,84 \cdot 10^{10}$	$2,07 \cdot 10^{11}$
C	$3,90 \cdot 10^{10}$	$3,66 \cdot 10^{10}$
O (ZrO_2)	$6,49 \cdot 10^8$	$2,28 \cdot 10^{10}$

Signalons que la réaction sur le béryllium est particulièrement intéressante au point de vue flux et dans ce cas les problèmes relatifs à la cible peuvent être facilement résolus.

Dans le cadre d'un projet propre à l'Euratom, et relatif à la production de Phosphore ^{33}P le problème d'obtention de flux intense de neutrons dont l'énergie est d'environ 800 keV est lié également à la tenue de la cible de fluorure de lithium utilisée pour cette production.

Rappelons d'abord quelques caractéristiques de ce problème: il s'agit de la réaction de production de Phosphore 33 basée sur la réaction $S^{33}(n,p)P^{33}$. Il fallait éviter dans ce cas la réaction parasite $S^{32}(n,p)P^{32}$ dont le seuil est à 1 MeV environ. La réaction productrice de neutrons utilisée était la suivante: $Li^7(p,n)Be^7$ l'énergie des protons de 2,5 MeV.

Pour obtenir une certaine activité, la durée d'irradiation devait dépasser les 10 heures. Dans les conditions précitées, de telles irradiations n'ont pu être réalisées, sans destruction de la cible, (c'est-à-dire obtention d'un flux constant pendant 10 heures), que pour un courant de faisceau maximum en protons de 35 microampères correspondant environ à un flux de 10^{10} neutrons/sec.cm²

Comme la cible de soufre naturel était de 1 kilo et que l'activité produite était de 10 microcuries, il va sans dire que les taux de comptage obtenus ne permettent pas à l'heure actuelle de dire formellement s'il y a eu production de P^{33} . Néanmoins, ces difficultés sont en cours d'être surmontées car, comme dans le cas des cibles de tritium nous avons été obligés d'employer un artifice c'est à dire que nous utiliserons une cible tournante qui pourra tolérer un courant de faisceau de 300 μ A. et ultérieurement de 1,2 milliampère.

J'ai dit antérieurement, que le troisième point qui avait suscité notre action concernant les cibles, résidait dans le fait que dans le cas de la production de sources intenses de neutrons, de l'ordre de 10^{16} neutrons/sec.cm², le coût du neutron produit par accélérateur était moins élevé que celui produit en réacteur. Ceci devient intéressant, entr'autre, dans le cas de production de certains radioisotopes que l'on pense obtenir à haute activité spécifique, tel que le cobalt 60 ou encore pour la production de transuraniens.

Le projet canadien de Chalk River, dont émane ces renseignements, vise à l'obtention d'un flux de 10^{16} neutrons thermiques par sec/cm² à partir d'un flux polyénergétique de $9 \cdot 10^{18}$ neutrons/sec.

au moyen d'un courant de faisceau de 65 milliampères de protons de 970 MeV. La cible de bismuth utilisée mérite d'être citée, car elle a 10 cm de diamètre et 60 cm. de long. Le modérateur D^2O est contenu dans un réservoir de 250 cm. de diamètre et 300 cm. de long. La puissance du faisceau est de 65 Mégawatts. Les investissements sont estimés à 65 millions de dollars.

Cet exemple final qui laisse rêveur, et les autres aux performances plus modestes, rend compte de l'intérêt de la production des neutrons au moyen des accélérateurs, à conditions, bien sûr, que les nombreux problèmes relatifs aux cibles puissent être résolus. C'est dans ce domaine, et avec des moyens modestes, et même très modestes depuis la réduction drastique de nos budgets, que l'activité de l'Euratom tentera de se poursuivre.

Monsieur CORNUET

Je remercie M. Godar de m'avoir proposé de présider la séance de ce matin, et je le remercie également d'avoir fait une bonne partie de mon travail en nous donnant des informations générales.

Je vous rappelle que cette conférence a surtout pour but un échange d'informations et d'idées. Ainsi donc, à part la séance de ce matin, qui sera plus formelle en ce sens qu'il y aura surtout des exposés, l'après-midi et les séances de demain, seront surtout consacrées aux discussions.

Le programme de la réunion de ce matin montre qu'il y aura probablement peu de place pour les discussions. Ces dernières, pour suivre la tradition encore jeune de ce type de colloque, auront lieu suivant le plan de discussions qui vous a été remis avec le programme.

Après chaque orateur, nous ne vous passerons pas la parole pour présenter vos questions, nous vous demandons de bien vouloir les noter et les présenter au moment opportun selon le plan de la discussion. Ainsi donc ce matin vous entendrez les exposés de M. le Professeur Besson, de M. Gerbier et de M. Broerse et s'il nous reste un peu de temps avant le déjeuner, nous commencerons

la discussion, suivant le plan qui figure à la page 3 de votre programme : Point I.4 Cibles tritées classiques (Zr - Ti) - Méthodes générales de préparation des cibles et leurs caractéristiques actuelles. Les questions que vous pourriez avoir à poser concernant les autres points seront à présenter cet après-midi ou demain donc selon l'évolution du plan de la discussion.

En m'excusant de ces longues explications, je passe maintenant la parole à M. le professeur Besson qui va nous parler de la thermodynamique et de la cinétique des systèmes métal/hydrogène.

Monsieur BESSON

Le texte qui suit représente le compte rendu stenographique peu modifié d'une conférence en partie improvisée. L'auteur s'excuse du caractère décousu de ce texte et des nombreuses négligences de style qui s'y rencontrent.

Cet exposé qui envisage uniquement l'aspect chimique du problème, aura un caractère très général, et laisse de côté toute application directe à l'obtention de neutrons.

La réalisation de cibles classiques au tritium repose sur la fixation de cet élément sous forme d'hydruure par un métal. Cette réalisation exige évidemment que l'hydruure ainsi formé soit suffisamment stable dans les conditions normales d'utilisation. C'est à dire que la pression de dissociation de l'hydruure soit suffisamment faible à sa température normale. Ainsi s'introduit l'étude thermodynamique du système métal/hydrogène.

Elle devra naturellement être précédée ou accompagnée par une étude structurale, c'est-à-dire par la détermination des phases formées dans cette réaction métal/hydrogène.

D'autre part, il est évidemment intéressant d'avoir des renseignements aussi précis que possibles sur la vitesse de formation d'un hydruure métallique à partir de l'hydrogène et du métal et inversement il est utile, étant donné que la stabilité des hydruures n'est

jamais complète, de connaître leur cinétique de décomposition, dans les conditions normales d'utilisation en accélérateur. On voit apparaître ainsi le second aspect de l'étude en question, à savoir l'aspect cinétique du problème, et nous retrouvons une seconde fois cette dualité, thermodynamique/cinétique, qui s'est imposée depuis très longtemps dans l'étude de tous les processus chimiques ou physicochimiques.

Tous les résultats ou la plupart des résultats dont nous allons faire état et, dont certains ont été obtenus assez récemment dans notre laboratoire, mais dont la plupart sont extraits purement et simplement de la littérature, ont été obtenus avec de l'hydrogène I ou éventuellement avec du deutérium, et, seulement dans quelques cas avec du tritium.

Les résultats obtenus avec l'un quelconque des isotopes sont évidemment les mêmes qualitativement, mais il conviendra de vérifier, dans les cas qui auront été plus particulièrement sélectionnés pour faire des cibles, dans quelles mesures la substitution du tritium à l'hydrogène ne modifie pas les constantes de stabilité et les constantes de vitesse des réactions considérées.

La première partie de cet exposé concerne plus particulièrement l'étude thermodynamique et structurale des systèmes métal/hydrogène. L'étude complète d'un système métal/hydrogène exige évidemment le tracé d'un diagramme pression-température-concentration du système dans l'espace, c'est-à-dire pratiquement le tracé des familles d'isothermes ou d'isobares de ce système. La méthode la plus simple, la plus utilisée en tout cas, pour l'étude expérimentale du problème utilise les isothermes. C'est une méthode déjà ancienne, puisqu'elle dérive des travaux célèbres de Gillepsie & Hall, qui remontent à 1936 sur le système hydrogène/palladium, et également à des travaux de Fowler qui sont à peu près de la même époque, sinon antérieurs. Cette méthode consiste tout simplement à introduire les quantités croissantes d'hydrogène en présence du métal, dans une enceinte

de volume déterminé, à suivre l'établissement de la pression d'équilibre dans cette enceinte à la température où l'on est placé, et finalement à tracer la courbe qui donne cette pression d'équilibre en fonction du rapport hydrogène sur métal, hydrogène introduit sur métal.

La figure I représente précisément un résultat qui a été obtenu pour le système erbium/hydrogène.

En abscisse figure la proportion d'hydrogène comptée en masse $\%$, $x=1,2 \%$ correspond à la formule d'un hydrure défini Er H_2 , on constate que ces courbes présentent toutes trois parties:

- une première partie ascendante qui correspond à la saturation du métal par l'hydrogène avec formation d'une solution solide du métal dans l'hydrogène.
- Une partie horizontale, dont la pression est évidemment d'autant plus forte que la température est plus élevée, qui correspond à l'équilibre entre le métal saturé d'hydrogène et un hydrure sous-stoechiométrique, c'est-à-dire inférieur en composition à la formule Er H_2 .

La troisième partie de la courbe, qui a rapidement une allure asymptotique, montre que la composition de cet hydrure varie à mesure que la pression d'hydrogène augmente et quand la pression d'hydrogène devient infinie, on a théoriquement la formule limite Er H_2 .

Nous avons donc au total 3 domaines séparés par les courbes en tirets. Le premier domaine correspond au métal plus ou moins saturé d'hydrogène mais la forme cristalline du métal est conservée. Le domaine qui est placé entre les deux traits en tirets correspond à un domaine diphasé; Il y a équilibre entre le métal saturé limite et l'hydrure inférieur limite. Le troisième domaine correspond à la saturation progressive de l'hydrure limite en hydrogène. Ce système erbium/hydrogène était connu dans la littérature depuis quelques années et nous l'avons précisé au

laboratoire en particulier en ce qui concerne l'extrémité de ce domaine. En effet, il est très difficile expérimentalement de fixer avec précision la fin du palier, alors qu'il est important en pratique de savoir si l'on se trouve en domaine monophasé ou en domaine diphasé. Cette difficulté veut tout simplement dire que, au voisinage de l'équilibre, les réactions deviennent plus lentes et on a tendance à avoir la partie ascendante de la courbe avant que le palier soit réellement terminé. Divers artifices ont été utilisés pour pallier cette difficulté; en particulier le fait d'opérer par refroidissement, mais nous passons sur ces détails purement techniques et nous signalerons simplement ici que nous avons pu de cette façon contrôler les résultats de Mulford tout en montrant que les paliers d'équilibre diphasés se prolongeaient un peu plus vers la droite qu'il ne l'avait observé lui-même.

La figure 2 est relative au même diagramme pour le système uranium/hydrogène. Ici, avec l'échelle qui a été choisie, on voit que le palier s'étend pratiquement sur toute la largeur du diagramme. On n'a pas représenté la partie gauche ascendante de la courbe, tout simplement parce que cette partie ascendante est pratiquement confondue avec l'axe vertical - l'axe des pressions -. En somme notre diagramme ici se compose d'une verticale, d'une horizontale, et d'une autre verticale. L'hydruure d'uranium est donc dans les domaines de températures étudiés presque stoechimétrique. Il ne l'est pas toutefois complètement, et, la figure suivante (3) représente la partie droite du diagramme fortement grossie.

On observe là aussi, une asymptote verticale à $x=3$ et une ligne en tirêt qui sépare le domaine diphasé d'un domaine monophasé correspondant à la saturation de l'hydruure, qui est ici un tri-hydruure.

Figure I

26.-

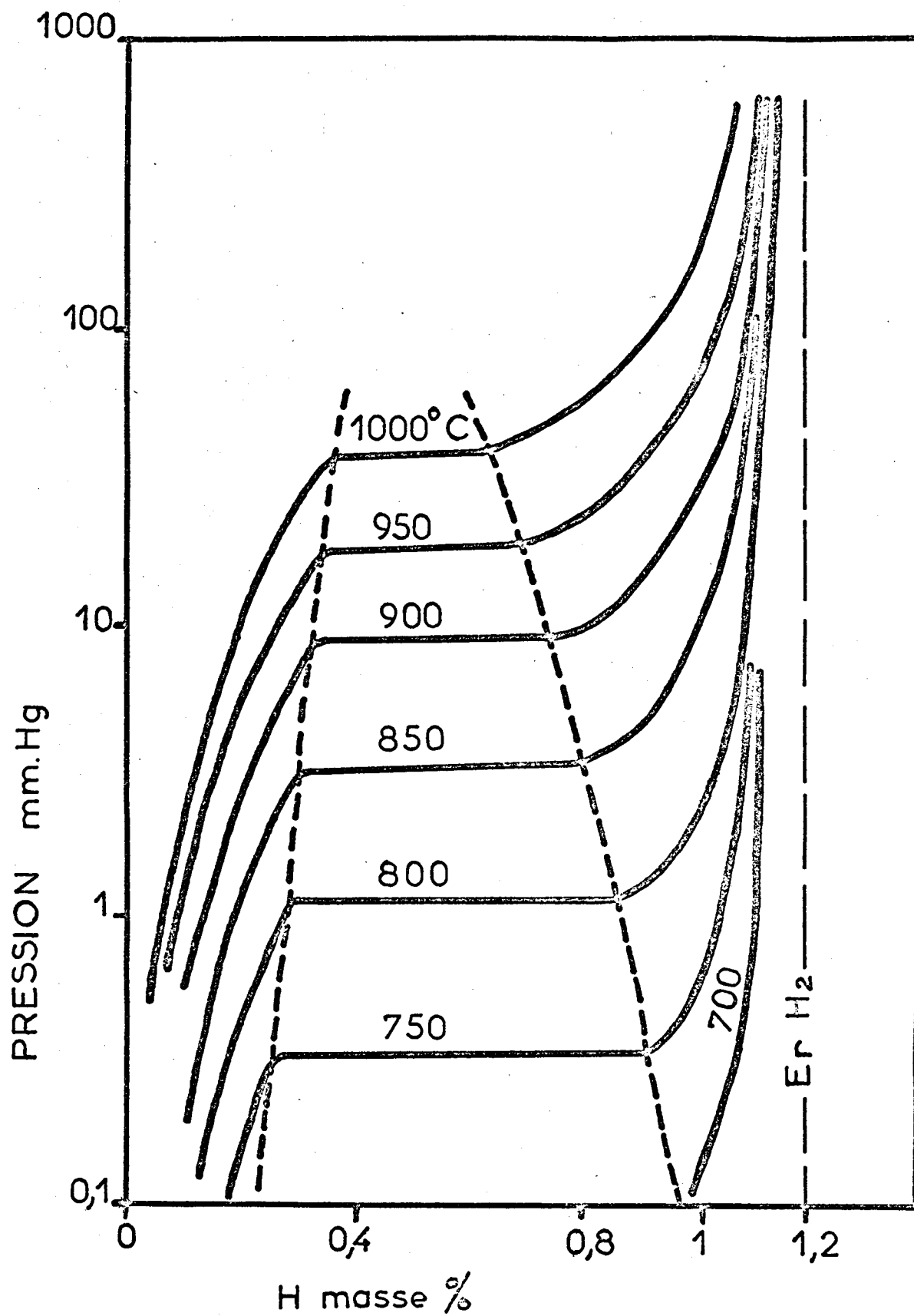


Figure 2

PRESSIONS d'EQUILIBRE ISOTHERMES

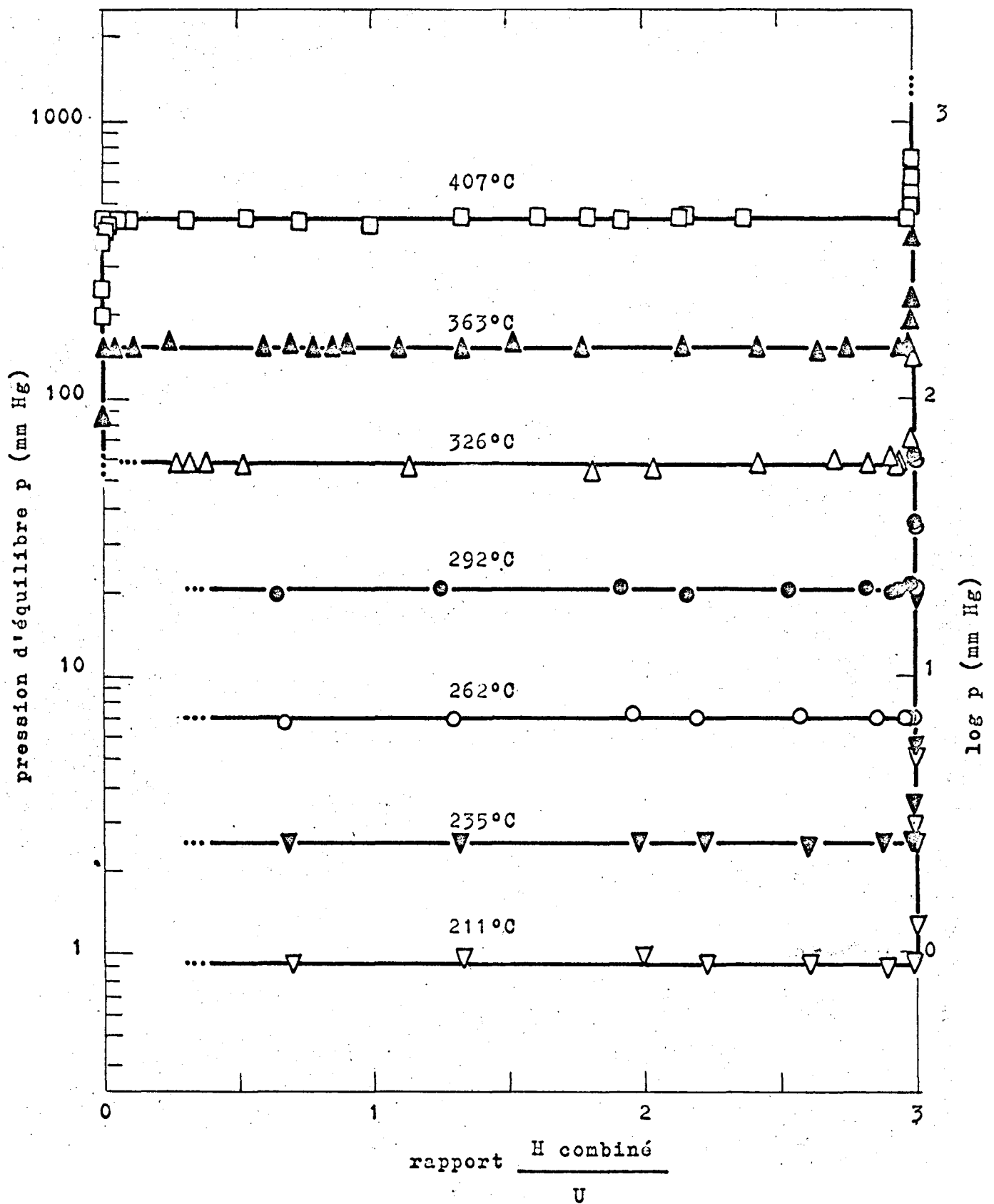
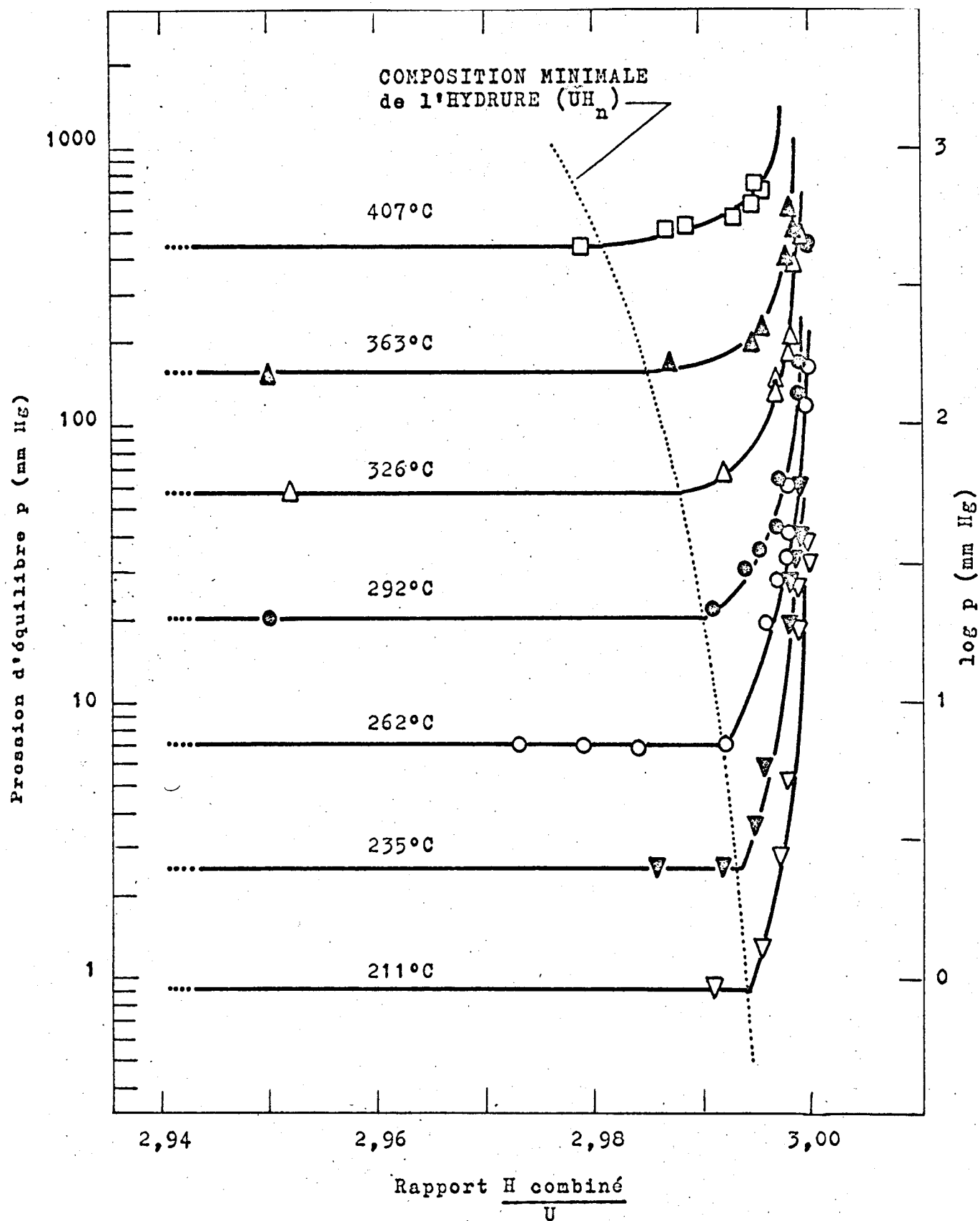


Figure 3

PRESSIONS d'EQUILIBRE ISOTHERMES



L'uranium ne fait donc pas du tout exception à la règle générale. On retrouve bien les domaines normaux, seulement avec des limites, très voisines des extrémités du diagramme. Ajoutons que les températures sont assez basses, au maximum 400 degrés, et il n'y a pas de différence notable avec le cas précédent.

Le plus souvent cependant, ces diagrammes sont compliqués par l'existence de transformations allotropiques du métal. On arrive alors au diagramme suivant. (fig.4) qui est le diagramme isobare relatif au système titane/hydrogène.

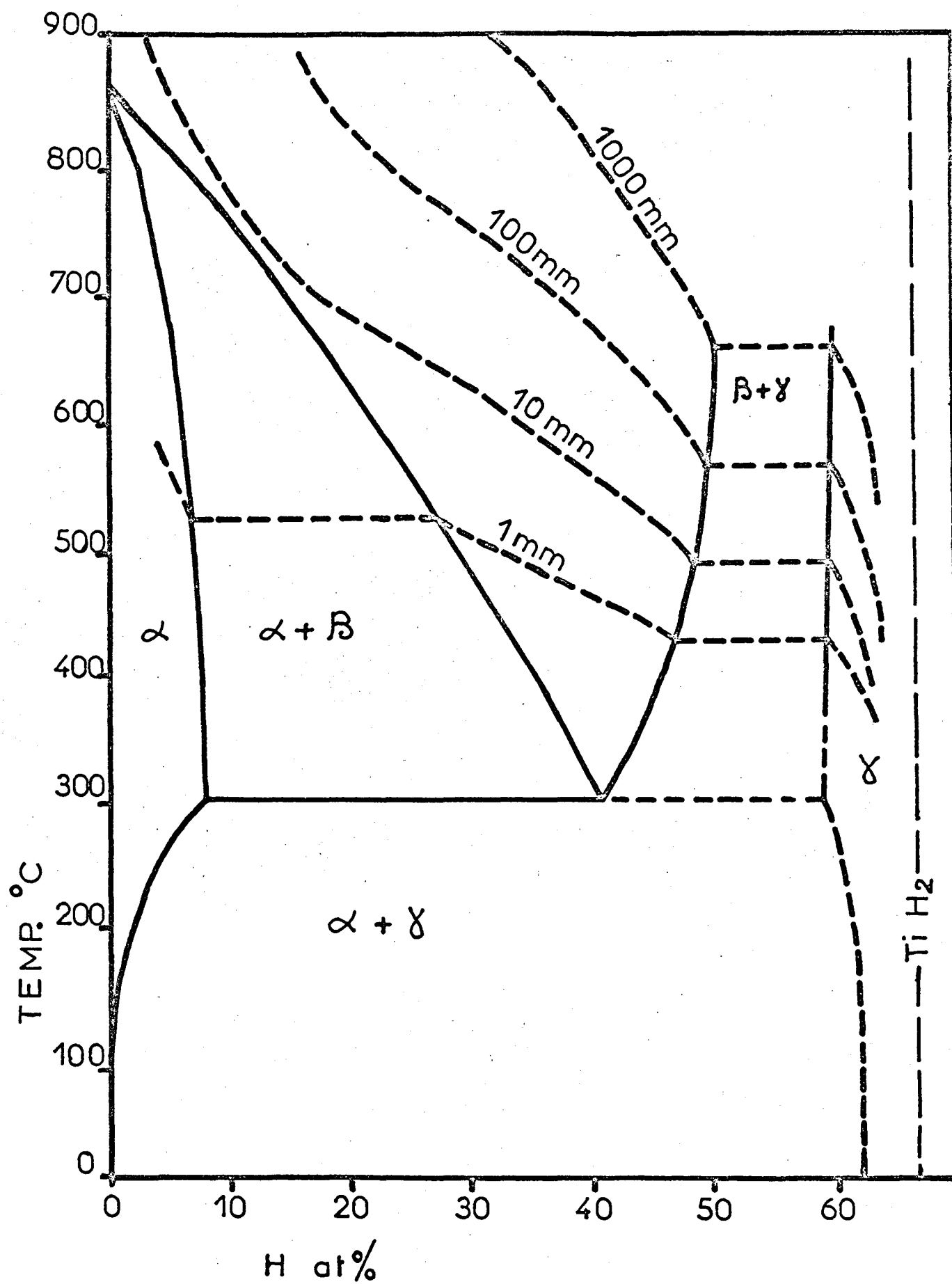
Le titane présente une transformation allotropique vers 850 degrés; il passe de la forme α à la forme β .

Nous avons donc ici un diagramme de transformation classique, en fuseau avec les zones qui sont représentées suivant la figure 4. γ désigne en fait l'hydrure TiH_2 plus ou moins sous-stoechiométrique; α et β désignent les deux variétés allotropiques du titane plus ou moins saturées d'hydrogène. Nous avons ici, par conséquent, plus de domaine que dans le cas précédent: le domaine Titane Alpha pur, plus exactement la forme Alpha plus ou moins imprégnée d'hydrogène jusqu'à la saturation limite; le domaine diphasés Alpha + Béta, puis de nouveau une zone monophasée qui est le titane Béta avec hydrogène, une nouvelle zone diphasée. $Ti\beta + TiH_2$ enfin la zone TiH_2 sous-stoechiométrique.

Les courbes en tirets qui sont représentés suiv. la figure 4 correspondent précisément aux expériences isobares et indiquent la température à laquelle la pression du système a les valeurs de 1 mm., 10 mm., 100 mm. ou 1.000 mm. Etant donné qu'il y a deux zones diphasées, la zone Alpha + Béta et la zone Béta + Gamma, ces courbes présentent naturellement deux paliers et non plus un seul comme dans le cas précédent. Il reste évidemment pour les utilisateurs de ces hydrures, à savoir lequel de ces deux paliers est le plus avantageux, et c.à.d. l'hydrure le plus stable.

Figure 4

30.-



Dans le cas de la figure 4, on voit que le palier Alpha/Béta correspond à une température supérieure au palier Béta/Gamma. Dans ces conditions, on pourrait penser théoriquement qu'il est plus avantageux pour construire des cibles d'utiliser non pas l'hydruire de titane, mais de rester dans le domaine diphasé des deux variétés allotropiques du titane. En fait, ceci est relatif à une pression de 1mm. c'est-à-dire une pression de dissociation qui est déjà énorme et qui conduirait à une destruction extrêmement rapide de la cible. Nous verrons que la conclusion est différente quand on se place aux pressions plus basses.

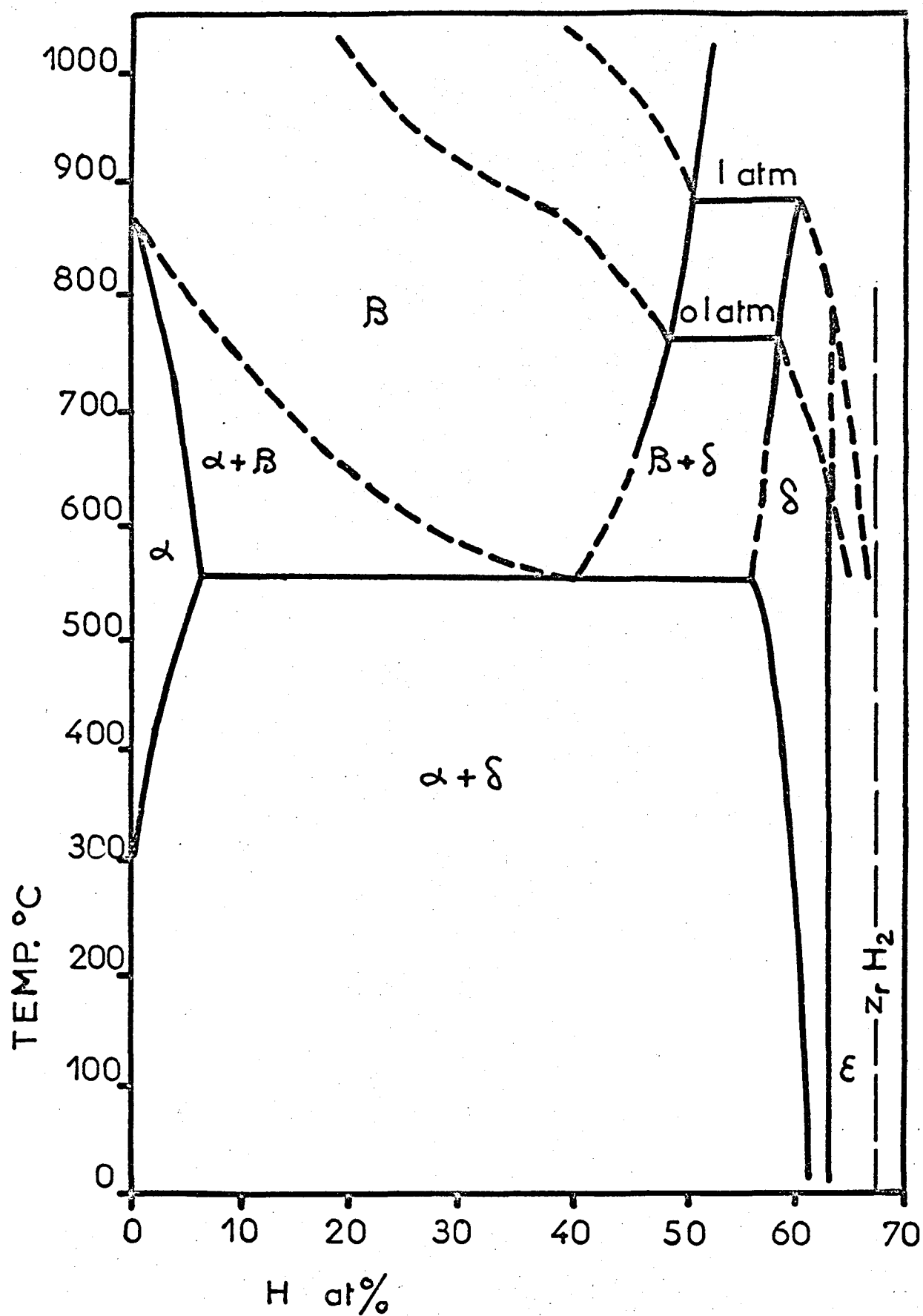
La figure 5 représente le même diagramme dans le cas du système zirconium/hydrogène. On retrouve une transformation allotropique vers 850 degrés entre la variété Alpha et la variété Béta du zirconium, le domaine diphasé des deux solutions solides limites en équilibre Alpha et Béta et le domaine (5) qui correspond à l'hydruire ZrH^2 .

La pression de dissociation est 0,1 atmosphère (c'est encore énorme naturellement) à une température d'environ 800 degrés dans le domaine Béta + Delta. Là encore, à priori, il semblerait donc que le domaine Alpha + Béta soit plus favorable que le domaine Béta + Gamma à la réalisation d'hydrures utilisables.

La figure 6 enfin, représente le diagramme dans le cas de l'uranium. Il a moins d'intérêt puisque l'uranium n'est pas à envisager pratiquement dans ce cas là, mais on y retrouve cette fois-ci le même phénomène avec évidemment la complication des trois variétés allotropiques de l'uranium; Alpha, Béta et Gamma et les zones fuseau correspondantes sont ici extrêmement réduites, mais la forme générale de la figure est la même.

D'autre part, dans un certain nombre de cas, il existe non pas un seul, mais deux hydrures définis et c'est en particulier le cas des lanthanides ou du moins de certains des lanthanides.

Figure 5



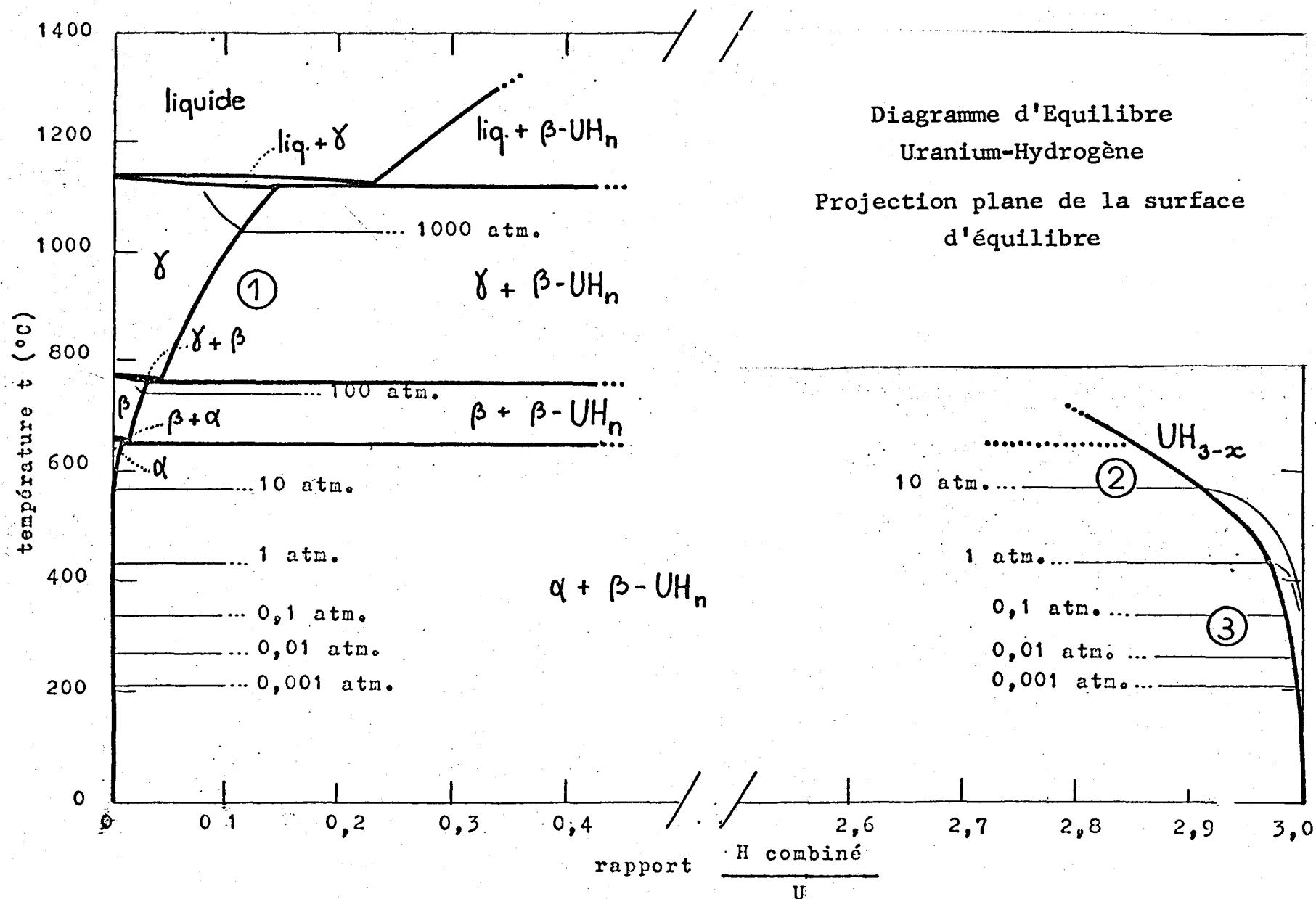


Figure 6

Ces éléments peuvent en effet fixer l'hydrogène jusqu'à un rapport hydrogène/métal égal ou peu inférieur à 3. Deux cas sont alors possibles,

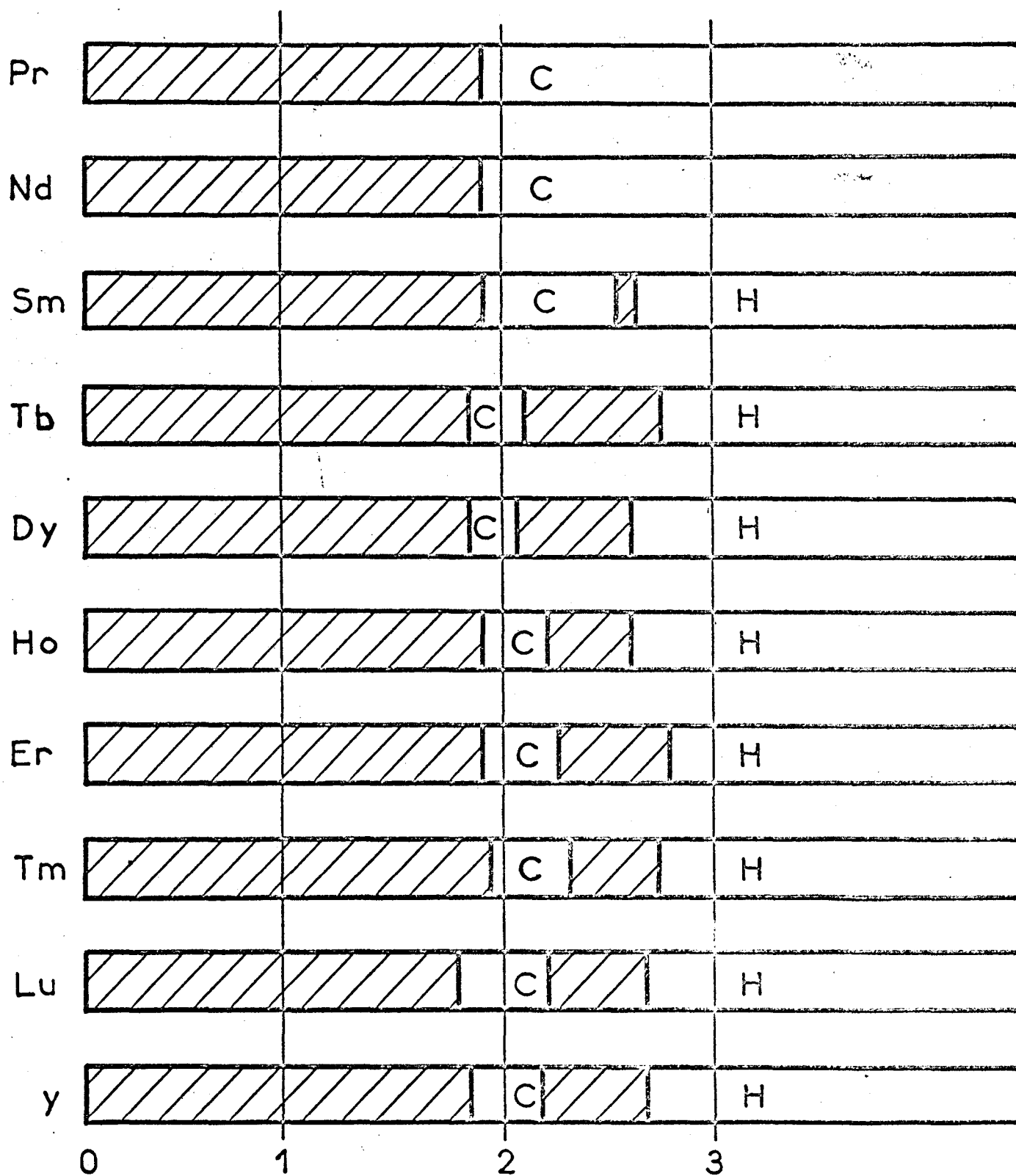
- a) ou bien, on observe une fixation continue d'hydrogène depuis la formule MH^2 jusqu'à la formule MH^3 avec passage continu du di- au trihydrure sans apparition de phases nouvelles, auquel cas les courbes isothermes dont nous avons parlé tout à l'heure, varient continuellement sans présenter de paliers. Dans ce cas il n'est pas correct de parler de deux hydrures différents; en réalité, il n'y a qu'un seul hydrure, qui est le trihydrure, et ce trihydrure est capable d'être très fortement sous-stoechiométrique jusqu'à atteindre la formule correspondant au dihydrure, et même en dessous.

Le cas :

- b) correspond au contraire à l'existence effective de deux hydrures, le di- et le trihydrure. Dans ce cas, il apparaît un nouveau domaine diphasé le domaine correspondant à l'équilibre dihydrure/trihydrure, domaine dans lequel la pression des courbes isothermes doit rester constante en vertu de la loi des phases. Nous avons ici donc deux paliers et il est intéressant d'étudier dans quelle mesure l'un ou l'autre de ces paliers est utilisable. La figure 7 représente dans le cas des terres rares le domaine d'existence de ces di- et de ces trihydrures. On désigne ici par c le domaine d'existence du dihydrure cubique et par h le domaine d'existence du trihydrure qui est hexagonal. On voit que, pour les premiers éléments des lanthanides, lanthane, cérium, praséodyme, néodyme, il n'existe pas de trihydrure au sens strict, c'est-à-dire que la fixation d'hydrogène continue jusqu'à un rapport très supérieur

Figure 7

35.-



$$\frac{H}{M} \longrightarrow$$

C dihydruce cubique

H trihydruce hexagonal

à 2 mais sans apparition d'une nouvelle phase. Le réseau reste cubique.

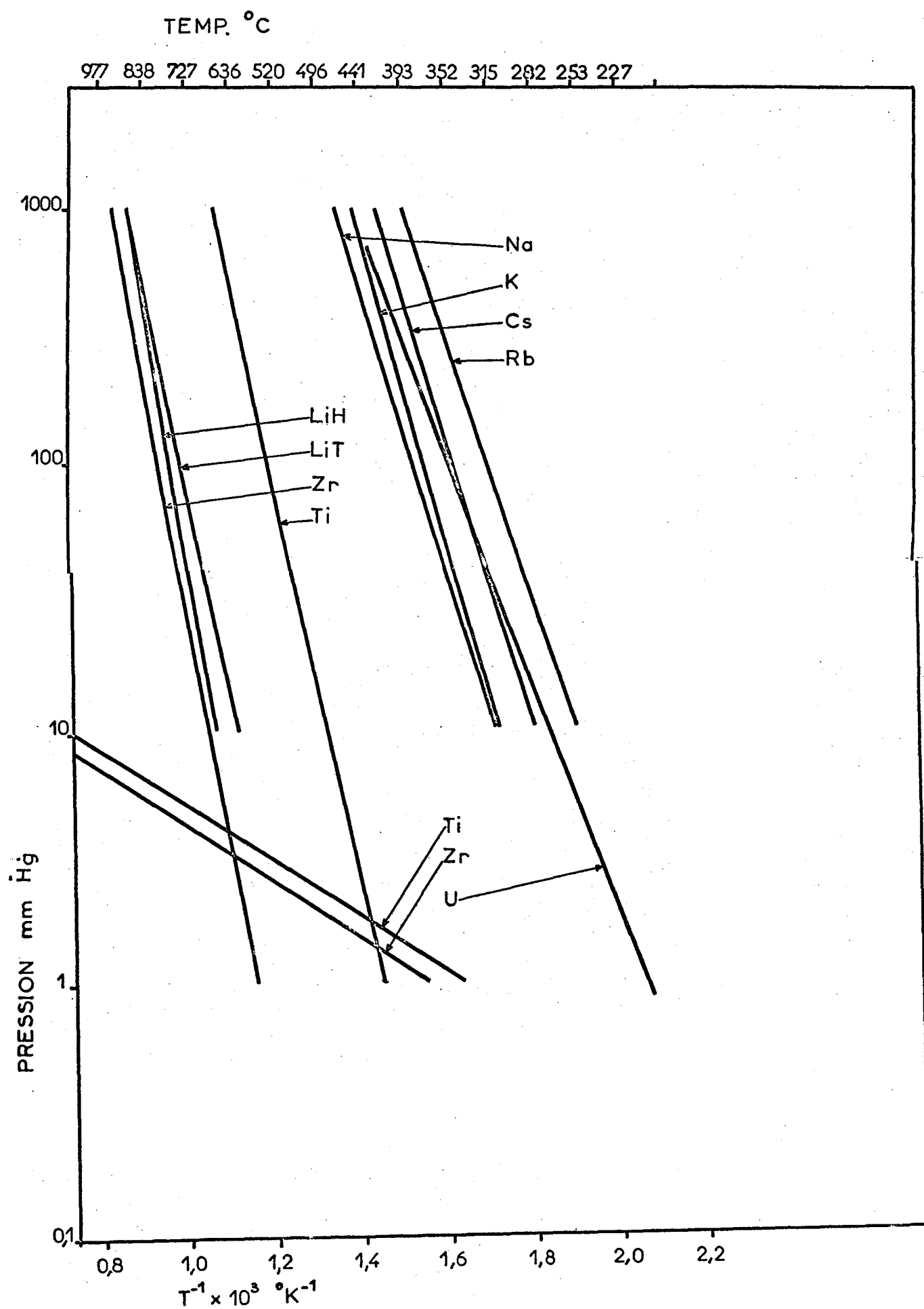
A partir du samarium et jusqu'au lutécium, ainsi que pour l'yttrium, au contraire, on trouve un domaine d'existence de la phase hexagonale correspondant au trihydruure.

Le domaine hachuré représente le domaine diphasé, c'est-à-dire le domaine d'existence du palier de pression, qui nous fixera les possibilités d'utilisation en accélérateur de ces hydrures. On voit que ce palier diphasé s'étend presque jusqu'à 2 dans le premier cas. Il apparaît un petit palier diphasé dans le cas du samarium entre la phase cubique et hexagonale, et le palier diphasé s'élargit ensuite, mais sans varier de façon très systématique avec les autres lanthanides.

Possédant les diagrammes PTC dont nous venons de parler, il est possible de tracer les courbes donnant les pressions de vapeur en fonction de la température absolue. On trace bien entendu les courbes logarithmiques en fonction de l'inverse de $1/T$ qui nous donnent directement certaines constantes thermodynamiques du système.

La figure 8 représente un faisceau de courbes relatives à différents hydrures où l'on a porté en abscisse l'inverse de la température absolue, en ordonnée les pressions de dissociation en millimètres de mercure. On voit tout de suite apparaître deux familles d'abord la famille des hydrures alcalins, sodium, potassium, césium, rubidium. L'uranium se trouve dans le domaine des alcalins, c'est-à-dire que la pression de dissociation de l'hydruure d'uranium est de l'ordre de grandeur de la pression de dissociation des hydrures alcalins. Puis nous avons le titane, qui occupe une position intermédiaire, enfin le lithium et le zirconium. Cette figure appelle certaines remarques: il y a, tout d'abord deux courbes qui ont l'air

Figure 8



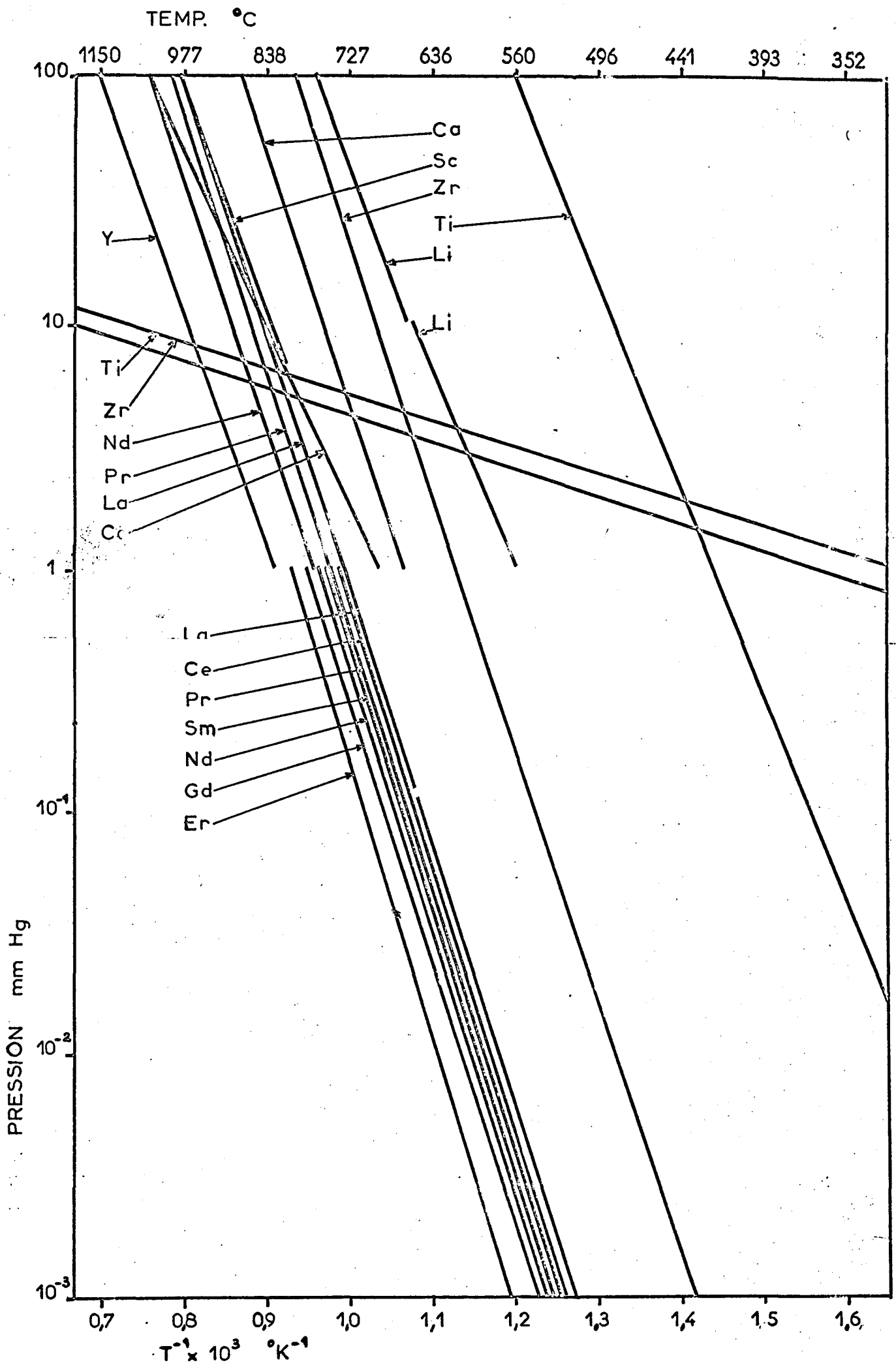
tout à fait aberrantes. Ce sont, précisément, les courbes relatives au titane et au zirconium, mais pour le premier palier $\alpha - \beta$ dont nous avons parlé, c'est-à-dire pour le palier d'équilibre entre les deux variétés allotropiques des métaux saturés d'hydrogène. On voit qu'effectivement, aux températures élevées, p.ex. 700 - 800° C (températures évidemment considérables) la pression de dissociation de ce palier alpha-bêta, est nettement plus faible que la pression de dissociation du dihydrure. Mais on voit aussi que ces courbes ont une pente beaucoup plus faible et que, à partir de 600 degrés à peu près, la pression de dissociation dans le domaine alpha-bêta devient considérablement plus forte que la pression de dissociation dans le domaine bêta-gamma qui, au contraire, descend presque verticalement. Il n'est donc pas question, contrairement à ce que l'on pourrait penser a priori d'utiliser le domaine alpha-bêta pour la réalisation d'hydrure suffisamment stable. Encore une remarque:

On a porté sur la figure une courbe relative à l'hydrure de lithium et au tritiure de lithium. A vrai dire, ces données expérimentales sont déjà assez anciennes. Mais, en gros, le fait est clair: on retrouve pour les deux courbes, tritiure et hydrure, à peu près la même pente et à peu près la même position. Par conséquent, l'extrapolation au tritium des résultats obtenus pour les hydrures, dans ce cas au moins, est certainement possible.

La figure 9 représente le faisceau de courbes de gauche de la figure précédente, c'est-à-dire celui qui correspond à la pression la plus faible. On y retrouve la courbe du titane et celle du zirconium - qui a été, cette fois-ci, prolongée jusqu'à des pressions de dissociation de 10^{-3} ; on y voit les hydrures de lithium et métaux alcalinoterreux, qui sont voisins de l'hydrure de titane au point de vue de la stabilité.

Figure 9

39.-



L'hydruure de calcium est même nettement plus stable que l'hydruure de titane; l'hydruure de lithium également. Enfin figure ici, la série qui nous intéresse plus particulièrement, à savoir la série des lanthanides et de l'yttrium. C'est l'erbium, qui détient le record de dissociation faible et peut-être l'yttrium (aux températures relativement élevées, l'yttrium a une pression de dissociation plus faible que l'erbium). L'incertitude tient à l'existence d'une discontinuité. Cette discontinuité tient à nos possibilités de mesure des pressions. On n'utilise pas le même appareillage, bien entendu, pour mesurer des pressions supérieures au millimètre de mercure et des pressions inférieures au millimètre; de sorte qu'il y a une discontinuité, une zone de raccordement plus ou moins satisfaisante. Mais, enfin, l'allure générale est bien claire: il faut porter les efforts sur l'yttrium-erbium, au point de vue des pressions de dissociation. L'erbium est mieux, à basse température. L'yttrium semble être supérieur à l'erbium aux températures élevées. La pression de dissociation, vers 300 degrés Celsius, n'est que de 10^{-10} millimètre de mercure (chiffre obtenu par extrapolation, naturellement). Autrement dit, pression très faible, stabilité en principe excellente.

A 427 degrés (c'est-à-dire à 700 degrés K), la pression de dissociation de l'hydruure d'erbium n'est encore que de 10^{-6} millimètre de mercure, environ. Ce sont donc des chiffres qui paraissent, a priori, très acceptables pour le fonctionnement pratique.

Il y aurait maintenant un certain nombre de remarques thermodynamiques à faire, concernant ces hydruures. Ces remarques thermodynamiques, elles n'intéressent que les spécialistes et nous passerons rapidement dessus. Il faut distinguer deux types d'hydruures: les hydruures non-stoechiométriques, et les hydruures stoechiométriques comme, par exemple, les hydruures alcalins ou alcalino-terreux.

Les hydrures non-stoechiométriques, en particulier, posent immédiatement un problème structural important, c'est de savoir quelle est l'origine de la sous-stoechiométrie, autrement dit, à quel type de la classification de Wagner appartiennent les réseaux cristallins de ces hydrures. Est-ce que ce sont des ions H^- qui manquent dans le réseau ? ou est-ce que ce sont, au contraire, des ions métaux supplémentaires qui viennent en position interstitielle de ce réseau ? Le problème peut se traiter thermodynamiquement, de façon indirecte, bien entendu, de la manière suivante : il est possible, par des considérations de thermodynamique statistique de trouver la relation entre la pression d'équilibre - la pression de dissociation, par conséquent - et la température. Et, suivant que l'on fait l'une ou l'autre des deux hypothèses (sous-stoechiométrie par hydrogène (par lacune) ou sous-stoechiométrie par interstitielle, les résultats ne sont pas les mêmes. La comparaison des isothermes théoriques avec les isothermes expérimentaux permettra donc de décider de la structure de ces hydrures. Ce calcul a été fait, notamment dans le cas de l'hydrure d'uranium, et indique une sous-stoechiométrie par lacune anionique. Je passe sur le détail de la formulation de ces structures, qui posent des problèmes également extrêmement importants et intéressants, mais qui sortiraient par trop du cadre de cet exposé. Il est très probable que les autres hydrures MH_2 sont du même type, notamment l'hydrure de titane, d'erbium et d'uranium. Quelques doutes sont, cependant, possibles dans le cas où la sous-stoechiométrie devient plus forte. Mais, enfin, quand on est au voisinage des hydrures MH_2 , la structure reste la même. Ces structures étant admises, il est possible, à partir des résultats expérimentaux d'évaluer les différentes grandeurs thermodynamiques relatives à ces hydrures et relatives aux constituants de leurs réseaux. On peut, en particulier, évaluer les activités des ions H^- (car il s'agit, ici, d'ions H^- , bien entendu, et non d'ions H^+).

On peut évaluer l'activité des ions uranium, celle des lacunes dans le réseau et, par des méthodes thermodynamiques extrêmement classiques, on peut calculer les différentes relations de saturation de l'hydrure limite d'équilibre. Autrement dit, on peut calculer l'équation de la dernière partie de la courbe. Tout ceci est assez usuel pour des thermodynamiciens.

Les hydrures stoechiométriques posent des problèmes thermodynamiques également, mais on pourrait presque dire, qu'ils sont beaucoup plus philosophiques. Ils posent le problème de la définition des activités d'un élément dans un réseau stoechiométriques. Et on voit immédiatement l'origine de ce problème. C'est que, pour définir une activité ou un potentiel chimique, il faut définir une variation d'enthalpie libre, en fonction de la concentration, puisque le potentiel chimique est défini comme dérivée partielle de l'enthalpie libre par rapport à la concentration. Si le réseau est stoechiométrique - et parfaitement stoechiométrique -, on est paralysé car on n'a pas le droit de faire varier les proportions des constituants les uns par rapport aux autres et, par conséquent, on est dans l'impossibilité matérielle de définir physiquement le potentiel chimique d'un élément dans un réseau stoechiométrique. Ce n'est pas exagéré de dire qu'il s'agit ici d'un problème philosophique ou presque et il faudrait se demander qu'elle est la réalité physique qui se cache derrière ce paradoxe d'impossibilité de définir un potentiel chimique dans un réseau stoechiométrique. Le problème a été abordé par les thermodynamiciens, qui ont été jusqu'à introduire des potentiels chimiques imaginaires. Bien entendu, nous ne nous étendrons pas là-dessus et nous passerons au paragraphe suivant qui concerne, toutefois, encore des problèmes structuraux.

Nous venons d'en parler à propos de la détermination indirecte de la nature de la stoechiométrie mais, bien entendu, rien ne vaut une détermination expérimentale directe d'un réseau

cristallin. Cette détermination expérimentale directe résulte normalement d'études radio-cristallographiques mais, on sait que, dans le cas de l'hydrogène, les études radio-cristallographiques aboutissent à une impasse puisque l'hydrogène ne se laisse pas détecter aux rayons X. Il est curieux de constater que c'est précisément la diffraction neutronique qui a permis de localiser les hydrogènes dans le réseau cristallin des hydrures et nous avons là un bel exemple de service mutuel que se rendent l'hydrogène et les neutrons. Quoiqu'il en soit, cette diffraction neutronique a permis d'étudier la structure cristalline complète d'un certain nombre d'hydrures métalliques, (pour les deutérures, cela marche encore mieux à cause des facteurs de dispersion de l'hydrogène) et je citerai seulement la détermination complète de structures des hydrures alcalins, de l'hydrure de nickel ou, plus exactement, du nickel hydrogène catalytiquement, qui possède des hydrogènes en position bien déterminée, de l'hydrure de palladium, de l'hydrure de chrome, de thorium, de zirconium, d'uranium, de rhénium. En particulier, dans le cas où il existe des di- et des trihydrures, la diffraction neutronique a permis de préciser la position des ces hydrogènes supplémentaires et elle a bien mis en évidence le fait que, dans le cas des premiers lanthanides (cérium, lanthane, lanthane-cérium, praséodyme et néodyme) ces hydrogènes supplémentaires venaient se placer en position interstitielle variable dans le réseau cristallin, sans modifier notablement ce réseau qui est cubique et qui reste cubique - ce qui explique, en somme, la variation continue de la forme cristalline depuis MH_2 jusqu'à MH_3 -. A partir du samarium, au contraire, nous avons vu apparaître une nouvelle phase hexagonale et, là encore, on a pu suivre ce réarrangement du réseau cristallin et déterminer exactement la structure de ce tri-hydrure dans certains cas. Il ne semble pas, toutefois, que les tri-hydrures aient fait

l'objet de calculs thermodynamiques et, d'ailleurs, leur instabilité et leur activité chimique est beaucoup plus grande que celle des di-hydrures et, par conséquent, ils ne sont pas, a priori, à recommander pour la réalisation d'un hydrure stable.

La deuxième partie de cet exposé sera infiniment plus courte que la première, tout simplement parce que nous disposons de beaucoup moins de renseignements. Cette deuxième partie est consacrée à la cinétique des systèmes métal-hydrogène, c'est-à-dire au deuxième volet du diptyque thermodynamique-cinétique que l'on retrouve toujours dans toutes les études d'un système quelconque.

Je répète comment se pose le problème. La thermodynamique nous a permis de sélectionner un certain nombre d'hydrures, dont la stabilité paraît, a priori, suffisante pour permettre la réalisation de cibles d'une durée de vie suffisante, dans des conditions normales d'utilisation. Il faut encore vérifier dans quelle mesure ces hydrures se laissent former à partir d'hydrogène et de métal, c.a.d. il faut déterminer leur cinétique de formation et leur cinétique de décomposition, dans les conditions de travail normales. Autrement dit, il faut étudier la variation du rapport H sur M, en fonction du temps, quand on introduit de l'hydrogène sous une pression déterminée au contact du métal correspondant et quand on suit la variation H sur M en fonction du temps. C'est un problème typique de cinétique hétérogène. Il existe deux méthodes pratiques très classiques pour étudier les problèmes de cinétique hétérogène, ces deux méthodes étant la thermogravimétrie et la manométrie. En thermogravimétrie, on trace tout simplement la variation ΔM de masse de l'échantillon en fonction du temps; en manométrie, on trace la variation ΔP de pression du gaz en fonction du temps et, par un calcul élémentaire, on remonte des courbes ΔM ou $\Delta P = F(T)$, aux courbes que l'on cherche $H/M = F(T)$. Bien entendu, là encore, si l'utilisateur peut se contenter de savoir que sa réaction se fait bien, le chimiste voudra aller

plus loin et rendre compte de la loi cinétique trouvée, c'est-à-dire interpréter le mécanisme intime de la réaction hétérogène. Et cela n'est pas facile. Une réaction hétérogène, en effet, comporte une succession d'étapes - il y en a 5 -, que l'on peut résumer ainsi :

- 1°) transport dans la phase gazeuse (il faut apporter les molécules gazeuses jusqu'à la surface du métal;
- 2°) l'adsorption du gaz sur la face externe.
- 3°) les molécules de gaz réagissent dans des conditions, d'ailleurs, très variables - qu'il n'est pas simple de préciser - avec certains éléments du réseau MG et donnent ce que l'on appelle, en cinétique hétérogène, la "demi-réaction externe" - .

Cette demi-réaction externe produit des particules qui vont diffuser à l'intérieur de la couche de produit MG - ce sera l'étape n° 4 - et, finalement, les particules diffusantes, vont arriver au contact du métal, réagir avec le métal, en donnant la cinquième étape - que l'on appelle la "demi-réaction interne".

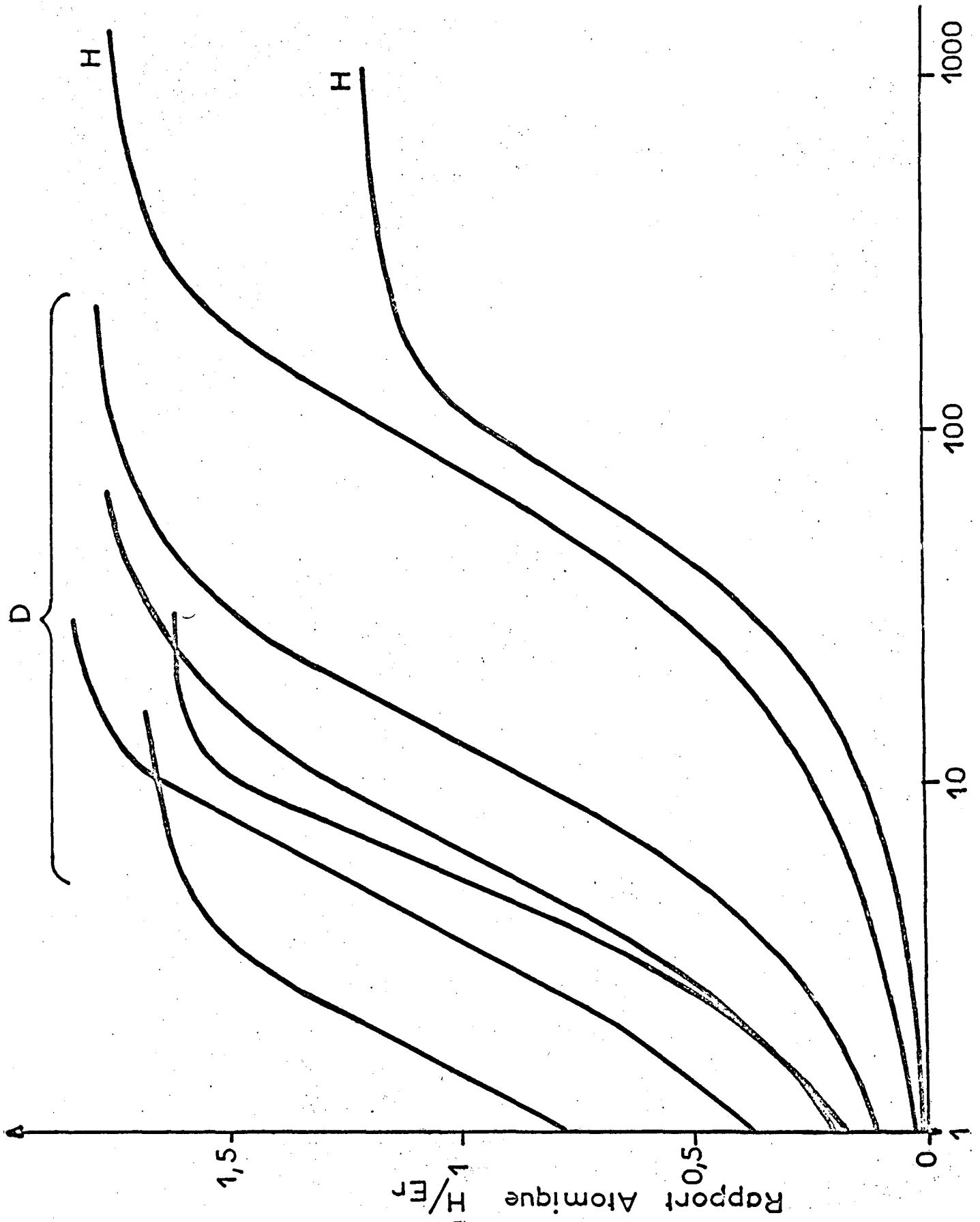
Chacune de ces étapes est régie par des lois déterminées, lois de réaction ou lois de diffusion et, caractérisées par une certaine constante de vitesse - deux constantes de vitesse si la réaction est réversible -, et chacune de ces étapes intervient pour préciser le mécanisme global. Il est possible de traiter quantitativement le problème, en écrivant les équations de vitesse pour chacun de ces processus. Cela va donner un système de cinq équations aux dérivées partielles en X et T (en abscisses et en temps), avec des conditions limites particulièrement complexes puisque la couche de produit MG est en cours d'accroissement. C'est un problème mathématiquement inextricable; du moins qui ne peut être traité qu'à la machine, dans des cas relativement simples, mais qui

peut se traiter néanmoins. En fait, le cas général en cinétique n'est pas extrêmement intéressant, car les constantes de vitesse des différents processus élémentaires sont évidemment variables. Il suffit, que l'une de ces constantes soit, par exemple, dix fois ou, encore mieux, cent fois, plus faible que les autres, pour qu'un seul processus impose sa vitesse au processus global. C'est dans ce sens que les cinéticiens parlent de réaction limitée par l'adsorption, par la réaction externe, par la diffusion ou par la réaction interne. Alors, le système se laisse intégrer très facilement; et l'on arrive très facilement à établir le régime cinétique, c.a.d. de la loi qui lie, la quantité de produit formé au temps. Inversement, à partir des courbes expérimentales, il est possible de déterminer le processus limitant.

La figure 10 représente un faisceau de courbes cinétiques qui se rapportent précisément au cas de l'erbium-hydrogène ou erbium-deutérium. Il s'agit de couches d'erbium évaporé, par conséquent d'un erbium se trouvant pratiquement dans les conditions d'utilisation pour la fabrication de cibles. Comme dans toutes les courbes cinétiques, nous avons en abscisse le temps en minutes et en ordonnée le rapport H/Er atomique; la limite 2 correspond au dihydruure - on voit que l'on n'arrive pas à cette limite, mais l'on tend vers une asymptote. Que peut-on tirer de ces courbes ? Absolument rien. C'est le genre de courbes qui fait le désespoir du cinéticien par leur manque de reproductibilité. Bien que les échantillons d'erbium aient été, en principe, préparés de la même façon, évaporés dans des conditions identiques, à la même pression, à la même température, les différences qui séparent ces différentes courbes sont énormes. Bien sûr, l'allure générale est la même; mais pour certaines courbes le $\log.t = 0$, c'est-à-dire qu'au bout d'une minute, nous n'avons pratiquement pas fixé l'hydrogène, alors que pour d'autres, la fixation représente pratiquement 50% de la limite théorique.

Figure 10

47.-



Pourquoi cette différence ? C'est parce que l'évaporation est un processus délicat, surtout avec les moyens artisanaux dont nous avons disposé jusqu'à présent. Il est évident, que la qualité des couches évaporées que nous avons pu obtenir laissait énormément à désirer. D'ailleurs, l'étude aux rayons X met parfaitement en évidence la présence d'oxydes dans ces couches et leur adhérence aussi était mauvaise. Autrement dit, ces courbes ne donnent qu'une information. Elles fixent l'ordre de grandeur du temps nécessaire pour avoir une absorption correcte: l'asymptote étant atteinte entre 10 et 100 minutes, suivant la qualité du dépôt. Mais si l'on peut ainsi fixer un ordre de grandeur, il est bien évident qu'il est tout-à-fait vain de chercher à adapter une loi cinétique à ces courbes et qu'il est encore plus vain, par conséquent, de chercher un mécanisme qui rende compte de leur forme. Le problème n'est pas abandonné, nous nous en préoccupons beaucoup actuellement, mais l'effort doit porter sur l'amélioration de la qualité des couches et, dès que les couches seront bien reproductibles et non oxydées, nous pourrons faire de la bonne cinétique.

J'en arrive à ma conclusion, qui sera très brève.

On voit que l'étude physico-chimique, c'est-à-dire l'étude thermodynamique et l'étude cinétique de ces systèmes métal-hydrogène, accompagnée de l'étude structurale, offre déjà un guide précieux pour la sélection d'hydrures éventuellement utilisables en cibles. Néanmoins, il ne faut pas dissimuler que ces conditions sont loin d'être suffisantes et il est bien évident, en particulier, que les propriétés mécaniques des hydrures interviennent de façon directe dans la possibilité des cibles. D'autre part, la notion de température globale de la cible est une notion qui ne tient pas compte de tous les facteurs, et en particulier des effets mécaniques, des effets des bombardements de la dite cible par les particules accélérées. De sorte qu'il n'est pas du tout certain qu'un hydrure dont la pression de dissociation à la température, par exemple de 300 degrés, est très faible, se comportera mieux qu'un

hydrure dont la pression de dissociation est plus grande mais qui résiste mieux aux chocs mécaniques. Au total, par conséquent, il ne faut pas nourrir trop d'illusion sur la valeur décisive des arguments et des faits présentés ici, mais il n'en reste pas moins que ces études physico-chimiques des hydrures constituent un guide utile et en tout cas, doivent précéder toute étude complète d'un système métal-hydrogène que l'on envisagerait d'utiliser comme cible.

Monsieur CORNUET

Je remercie vivement M. le Professeur BESSON de ce brillant exposé de caractère fondamental et qui me semble, personnellement, constituer la meilleure introduction que nous pouvions souhaiter à ces journées d'études, en amenant les participants à pratiquer, dès l'abord, le "brain-storming" ! Je ne pense pas, contrairement à ce que disait le Professeur BESSON, que ceci, soit loin de nos préoccupations, parce que je suis persuadé, qu'il est extrêmement souhaitable d'avoir une connaissance fondamentale des sujets avant de pouvoir les utiliser pratiquement. Je pense qu'un tel exposé devrait initier ultérieurement de multiples questions et d'intéressantes discussions; malheureusement, je viens d'apprendre que le professeur BESSON ne pourra pas assister à la séance de cet après-midi. Je vais donc vous demander, puisque nous disposons avant l'interruption de séance d'au moins d'un quart d'heure, de bien vouloir poser maintenant vos questions, en vous priant de vous limiter aux questions concernant directement la conférence du professeur BESSON. Les questions de caractère plus général seront, je vous le rappelle, examinées cet après-midi.

Monsieur MORGAN

All the samples, or the metals which you have talked about are of the heterogeneous type. Have you or are you considering any studies on single cristallographic samples like the 110 or the 111 plane.

Monsieur BESSON

No we have not. We have placed ourselves in the position of the user of targets and we have taken the metals as we have got them evaporated. It is certain that these metals are very heterogeneous and it is probable that this is the reason for the unsuccessful kinetic study we have made. It is certain that studies on single crystals would be of very great interest for this reaction, but we have not made them up to now.

Monsieur HUNT

Professor Besson, you have talked about the variation in the rate of hydrogen uptake by the metals you have investigated, and indicated that this was possibly due to variable vacuum conditions during evaporation. Could you please tell us how carefully you have controlled these vacuum conditions and particularly how low was the base pressure of the system ? Was it, for instance, the order of ten to the minus six or ten to the minus ten ?

Monsieur BESSON

I must confess it was a very very poor vacuum. I cannot give any exact detail on the operation, because I have not made it myself but it is certain that the vacuum was not good at all, perhaps ten to the minus four but not more. Particularly during the evaporation there is a sudden increase in pressure, but there is no simple relation between the oxide content of the sample and the pressure neither has it been possible to relate the oxide content with the form of the kinetic curve.

Monsieur LOMER

In the case of the rare earths, you can consider in the tri-hydride phase that the hydrogen is going into the octahedral sites, a very naïve sort of picture no doubt. Is there any other equally naïve picture which would explain why titanium only forms the di-hydride and not the tri-hydride.

Monsieur BESSON

I cannot see any structural reason why titanium doesn't give a tri-hydride, but only di-hydride, but I am not a specialist of radio-cristallography and structure and perhaps someone can answer the question.

Monsieur REIFENSCHWEILER

Ich wollte etwas zu Ihren kinetischen Messungen mitteilen. Wir haben Metalle, z.B. Titan Y, durch Verdampfen des Metalles in einer Edelgasatmosphäre, in eine sehr fein verteilte Form gebracht. (x) Die einzelnen Metallteilchen hatten dabei einen Durchmesser von etwa 100 Å.⁰ Wir haben dann die Aufnahmegeschwindigkeit für Wasserstoff und auch für Tritium durch diese feinverteilten Metalle durch Messung des Gasdruckes gemessen. Der Gasdruck nahm bei diesen Messungen exponentiell ab und die Zeitkonstante betrug etwa 1 Sekunde. Das heisst, in einer Sekunde nimmt der Gasdruck auf 1/e des vorherigen Druckes ab. Bei Ihren Messungen betragen diese Zeiten etwa 10 Minuten. Ich glaube, es wäre sicher interessant, solche kinetischen Messungen an derartigen feinverteilten Metallen durchzuführen.

- (x) O. Reifenschweiler, Proc.Ind. United Nations Intern.Conf. Peaceful uses Atomic Energy 19 , 360-362, Sept.1958, Geneva
O. Reifenschweiler, Rev.Sci.Instr.35, 456-460, 1964

Monsieur BESSON

Wir haben diese Metallproben immer als evaporierte Probe genommen und nie als feinverteilter Metall, und es ist klar, dass die Kinetik der Reaktion völlig anders ist, wenn das Metall fein verteilt ist. Allerdings ist es nicht einfach, kinetische Messungen an Metallpulver durchzuführen, weil man auch in diesem Fall die Diffusion durch das Pulver betrachten muss. Sie sagten, dass Sie eine Exponentialabnahme des Druckes beobachtet haben. Ich wollte nun fragen, war der Wasserstoffdruck konstant gehalten bei diesem Versuch ?

Monsieur REIFENSCHWEILER

Bei den oben erwähnten Versuchen nicht.

Monsieur BESSON

Sie müssen beobachten, wenn der Druck abnimmt, dann nimmt auch die Reaktionsgeschwindigkeit ab und die Ergebnisse werden völlig verfälscht, wenn sie den Druck nicht konstant halten. Ich glaube nicht, wenn Sie eine Exponentialabnahme des Druckes beobachten, dass man überhaupt aus einer solchen Kurve etwas entnehmen kann, solange sie nicht die Beziehung zwischen Druck und Reaktionsgeschwindigkeit kennen. Und das kennen Sie nicht von vornherein. Das habe ich nicht erwähnt, aber, je nach dem Reaktionsmechanismus, hat man verschiedene Beziehungen zwischen Druck und Geschwindigkeit, und es ist meiner Ansicht nach irreführend, eine solche Kurve interpretieren zu wollen. Eine Exponentialabnahme, rein kinetisch gesehen, lässt sich nicht erklären. Ich glaube, dass die Änderung des Druckes dafür verantwortlich ist.

Monsieur REIFENSCHWEILER

Diese Messungen wurden von uns nicht für kinetische Untersuchungen unternommen, sondern zur Feststellung der Pumpgeschwindigkeit von Druckreglern und Absorptionspumpen für Wasserstoffisotope, bei denen ein sehr fein verteilter exothermer Wasserstoffabsorber zur Absorption dient.^(x) Derartige Druckregler werden von uns vor allem in abgeschmolzenen Neutronenröhren angewendet, sie sind aber auch sonst ein sehr brauchbares Hilfsmittel beim Experimentieren mit Wasserstoffisotopen.

Wir haben allerdings auch Messungen gemäss der von Ihnen vorgeschlagenen Methode ausgeführt. Dabei wurde der Gasdruck in einem Reservegefäss mit einem Druckregler auf einen bestimmten Wert eingestellt und konstant gehalten. Der Wasserstoff strömte durch einen bekannten Strömungswiderstand in das Reaktionsgefäss, in dem sich der Druckregler, dessen Pumpgeschwindigkeit bestimmt werden sollte, befand. Die Gasdrucke im Reservegefäss und im Reaktionsgefäss wurden dabei mit Ionisationsmanometern gemessen. Die Pumpgeschwindigkeit wurde aus der Druckdifferenz zwischen Reservegefäss und Reaktionsgefäss und dem Strömungswiderstand zwischen den beiden Gefässen bestimmt. Es wurden auch Messungen für verschiedene Temperaturen des absorbierenden Metalls durchgeführt. Diese bei verschiedenen Gasdrucken und Temperaturen ausgeführten Messungen ergaben etwa die gleichen Pumpgeschwindigkeiten wie die aus den Druckabnahmekurven für die verschiedenen Gasdrucke abgeleiteten Pumpgeschwindigkeiten. Alle diese Messungen wurden in abgeschmolzenen Vakuumgefässen, also unter sehr sauberen Versuchsbedingungen ausgeführt.

(x) Rev Sci.Instr.35, 456 - 460, 1964

Monsieur LOMER

I have a remark which might have some bearing on this previous discussion. In a study of the temperature stability of tritium absorbed in yttrium it was experimentally found that there was a markedly better stability in absorbing the tritium on a yttrium evaporated on to a molybdenum surface. Then the yttrium was heated and diffused somewhat into the molybdenum; such samples have a remarkably better temperature stability as compared to massed yttrium.

Monsieur BESSON

It is a point I have not mentioned but I think that one can make good progress if one studies metal alloys and not only pure metals. In the case you mentioned, molybdenum and yttrium, I think that the molybdenum, or more generally the alloying metal, has the role of protector against this bombardment I spoke of. I do not know if there is much difference in the thermodynamic stability of the yttrium hydride in presence of molybdenum, but I rather think it is a mechanical protection against these bombardments. There are probably many up to now unexplored possibilities in the use of such targets of two metals either alloyed with another or either evaporated on each other with slight diffusion between the two but I have no personal experience on such metal systems.

Monsieur CERBIER

Dans les conditions habituelles de fabrication des cibles, on ne voit jamais se former de tri-hydrure. Pour le cas de l'erbium, à quoi peut-on attribuer ceci ? Est-ce que cela vient de ce que l'on travaille à trop basse température, ou bien à trop haute température ?

Monsieur BESSON

Oui. Les tri-hydrures sont beaucoup moins stables que les di-hydrures. Et quand on fabrique les cibles, en faisant absorber du tritium vers 250/300 degrés, on est déjà au-dessus de la température de formation du trihydrure. En outre, la formation du trihydrure impose une modification notable du réseau cristallin. Tandis que la formation du dihydrure, n'impose pas une très grosse modification du réseau cristallin par rapport au métal. Il est donc probable que cette formation est plus facile. En tout cas, personnellement, nous n'avons jamais obtenu de trihydrure dans les conditions de fabrication des cibles que vous connaissez bien.

Monsieur CORNUET

Je remercie encore Monsieur le Professor Besson de ce très brillant exposé.

Avant d'aborder la seconde partie de notre programme de ce matin je vous rappelle qu'un certain nombre de visites sont prévues au programme et qu'il est nécessaire que les personnes intéressées soient inscrites au bureau avant demain midi. Je vous demande donc de ne pas trop tarder pour vous inscrire pour les visites qui pourraient vous intéresser. Je passe maintenant la parole à M. Gerbier, qui va nous parler des possibilités actuelles de production de neutrons rapides à l'aide d'accélérateurs électrostatiques de basse énergie.

Monsieur GERBIER

Monsieur le Président, Mesdames et Messieurs, je crains que le titre de l'exposé ne soit un peu ambitieux, car se sera surtout l'objet d'un survol général, destiné à poser les problèmes, bien plus qu'à suggérer des solutions. Cela va m'amener, tout d'abord, à rappeler des données de base qui sont familières à la

plupart d'entre vous, mais dont nous sommes en quelque sorte prisonniers et qu'il est utile, je crois, de préciser à nouveau, au début de ces discussions. Il existe de multiples façons de produire des neutrons à l'aide d'un accélérateur de particules. Lorsque l'énergie des particules accélérées augmente, de plus en plus de matériaux sont capables de produire des neutrons sous le bombardement. Malheureusement, le prix des machines monte également avec l'énergie. Ainsi (fig.I) une machine de 20 MeV coûte 25 fois plus cher qu'une machine de 200 KeV. Aussi, les réactions neutronigènes les plus utilisées sont-elles celles qui présentent une section efficace élevée pour les faibles énergies d'accélération. Le tableau I emprunté à E.A. BURRILL (1) montre les réactions utilisables en-dessous de 1 MeV; le tableau II montre les réactions utilisables de 1 à 3 MeV. Outre les seuils, figurés sur ces tableaux les éléments importants qu'il faut examiner sont le débit de neutrons que l'on peut espérer obtenir et le spectre. Pour une réaction donnée, le débit est proportionnel au courant de particules chargées, fourni par l'accélérateur. Ce courant sera donc un élément essentiel. Pour l'instant, comparons les rendements obtenus par micro-ampère de courant incident.

La figure 2) représente le rendement en micro-ampère pour les réactions les plus prolifiques.(2) (3) Les courbes correspondant aux réactions classiques, deutons-tritium, deutons-deuterium et deutons-béryllium, sont les courbes 1,2 et 3. On voit que pour les basses énergies, en dessous de 1 MeV, c'est la réaction deutons-tritium qui est de loin la plus intéressante. Les réactions deutons-béryllium et deutons-deuterium passent au-dessus-pour une énergie comprise entre 1 et 2 MeV- (4) (5) (6)

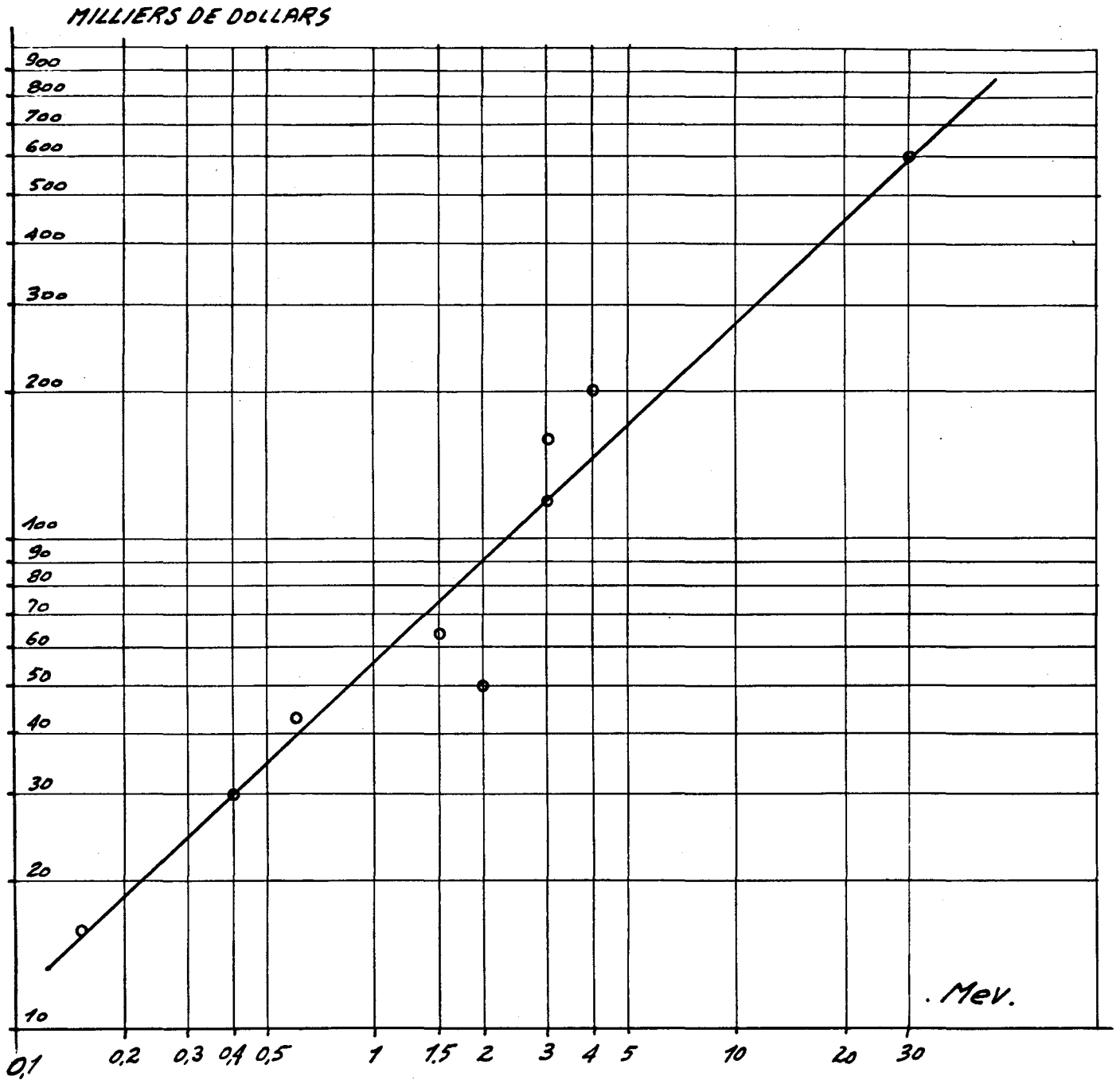


Figure 1

COÛT A L'ACHAT DES MACHINES DE BASSE ENERGIE

TABLEAU IEn dessous de 1 MeV

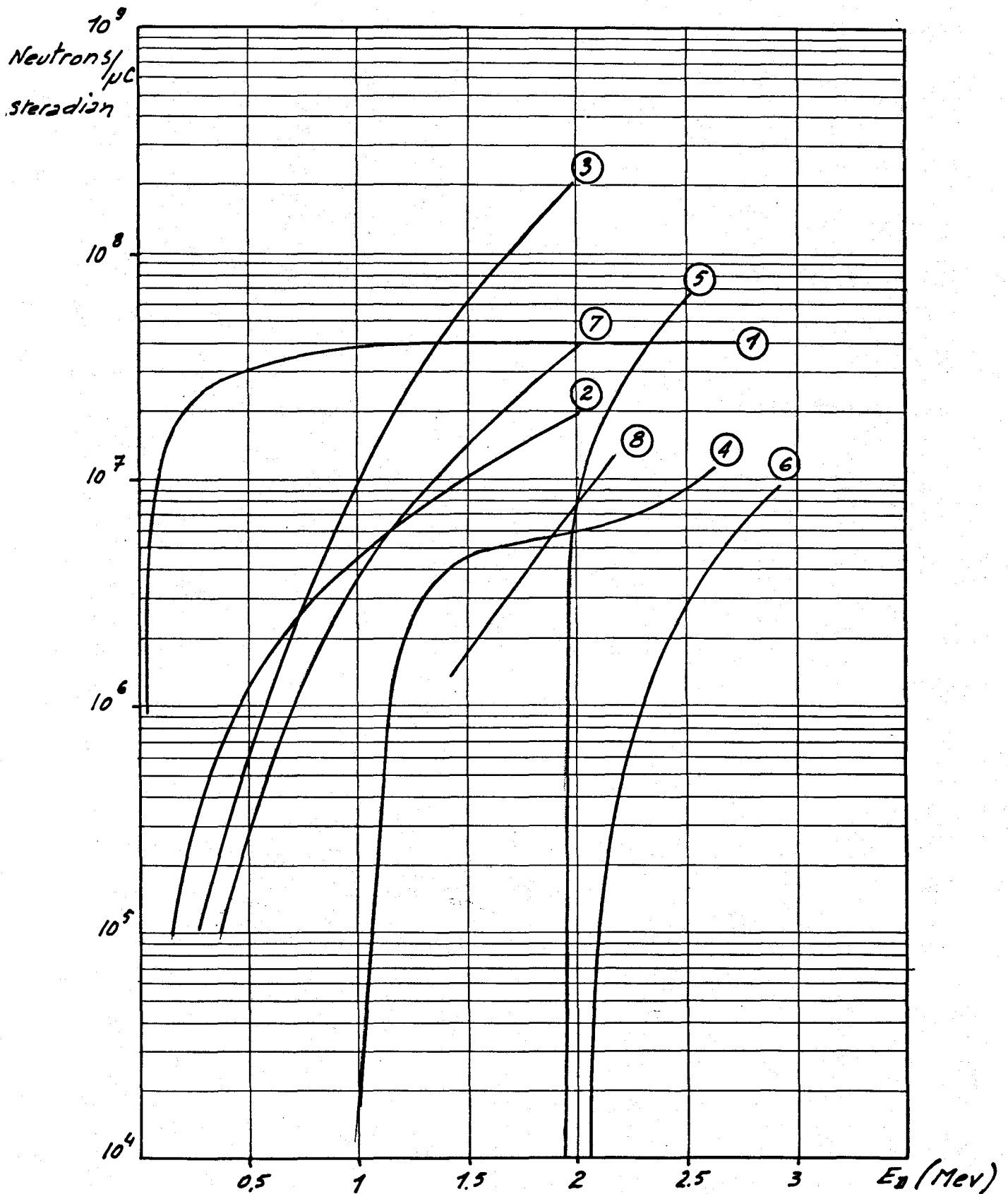
Réaction	Seuil	Observation
D (d,n) He ³	--	source intense
T (d,n) He ⁴	--	"
Li ⁷ (d,n) Be ⁸	--	source faible
Be ⁹ (d,n) B ¹⁰	--	"
C ¹² (d,n) N ¹³	0,328	"
Be ⁹ (α,n) C ¹²	--	"

TABLEAU IIDe 1 MeV à 3 MeV

Réaction	Seuil	Observation
T (p,n)He ³	1,08	-
V ⁵¹ (p,n)Cr ⁵¹	1,5	-
Li ⁷ (p,n)Be ⁷	1,88	-
Be ⁹ (p,n)B ⁹	2,06	-
Sc ⁴⁵ (p,n)Ti ⁴⁵	2,8 MeV	-
Be ⁹ (V,n)Be ⁸	1,66 MeV	accél.d'electrons
D (V,n)H	2,22 MeV	"

RENDEMENT DES REACTIONS NEUTRONIQUESFigure 2

- | | |
|---|-----------------------------|
| ① $T(d,n)He_4$ Thick | ⑤ $Li_7(p,n)Be^7$ Thick |
| ② $D(d,n)He_3$ Thick | ⑥ $Be_9(p,n)B_9$ Thick |
| ③ $Be_9(d,n)B_{10}$ Thick | ⑦ $C_{12}(d,n)N_{13}$ Thick |
| ④ $T(p,n)He^3$ 2.5mg/cm ² T.Ti | ⑧ $Be_9(\gamma,n)$ Thick |



La figure 3 présente plus en détail les rendements relatifs à ces trois réactions les plus intéressantes. On a fait à dessein figurer deux courbes pour la réaction DT. Elles sont relatives à des rapports isotopiques différents. γ est le rapport du nombre d'atomes d'hydrogène au nombre d'atomes de titane, par exemple. Ce sont donc ces trois réactions qui sont les plus intéressantes à basse énergie. Si j'ai cité les autres, c'est parce, qu'au cours de ces journées, des conférenciers nous parleront des cibles de lithium et autres matériaux. Mais pour ma part, je limite mon sujet à la production de neutrons à partir de deutons de moins de 1 MeV.

Je vous rappelle les caractéristiques spectrales de ces 3 réactions: les réactions DD et DT fournissent des neutrons sensiblement monocinétiques, et les chiffres de 3 MeV et de 14,5 MeV souvent cités, sont - bien sûr --approchés; ils dépendent, dans une faible mesure de la direction dans laquelle on se place. (fig.4). La réaction deutons-béryllium, par contre, fournit un spectre de plusieurs pics, (fig.5). Pour les énergies de deutons de 500 KeV et de 1 MeV -, j'ai placé ces courbes par rapport à un spectre type de fission en pile. Il y a donc plusieurs pics qui se placent aux environs de 2,3, 4,5 MeV, pour la réaction deutons-béryllium.

Avec un accélérateur de moins de 1 MeV, on dispose donc de 3 moyens de produire des neutrons en qualité appréciable. Et les débits qu'il faut attendre pour un courant de deutons donné avec une cible épaisse se placent relativement comme indiqué sur les tableaux III et IV.

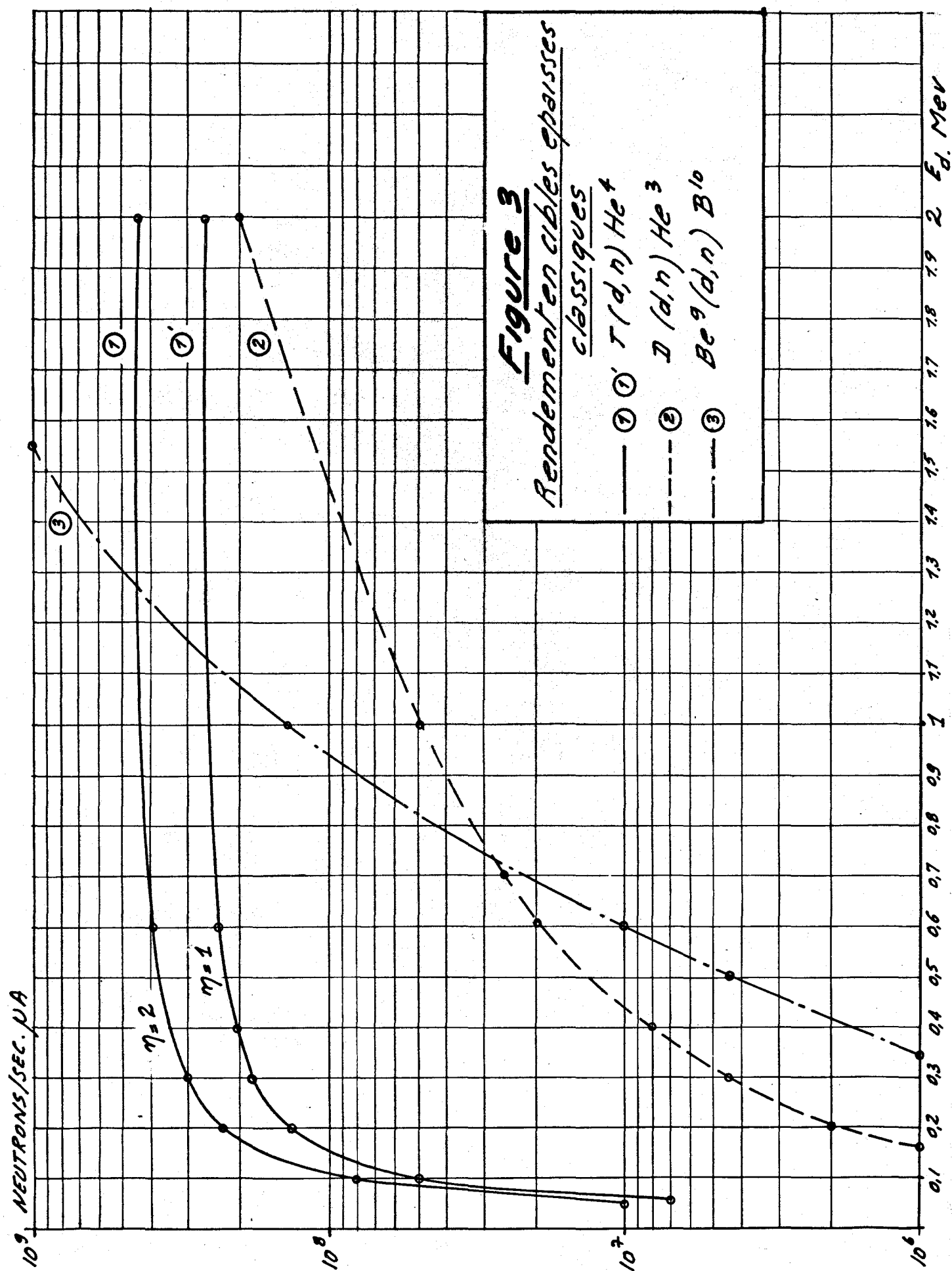
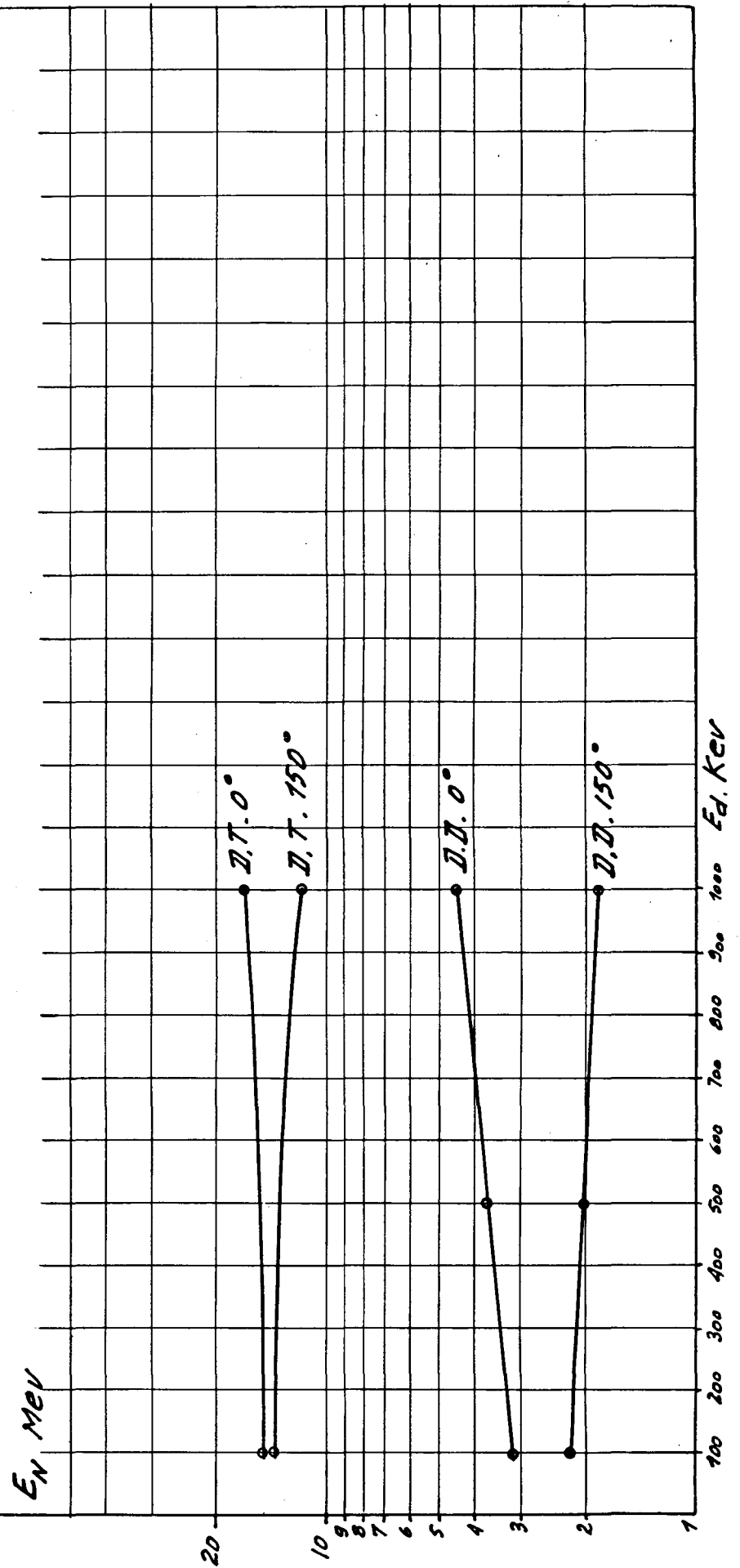
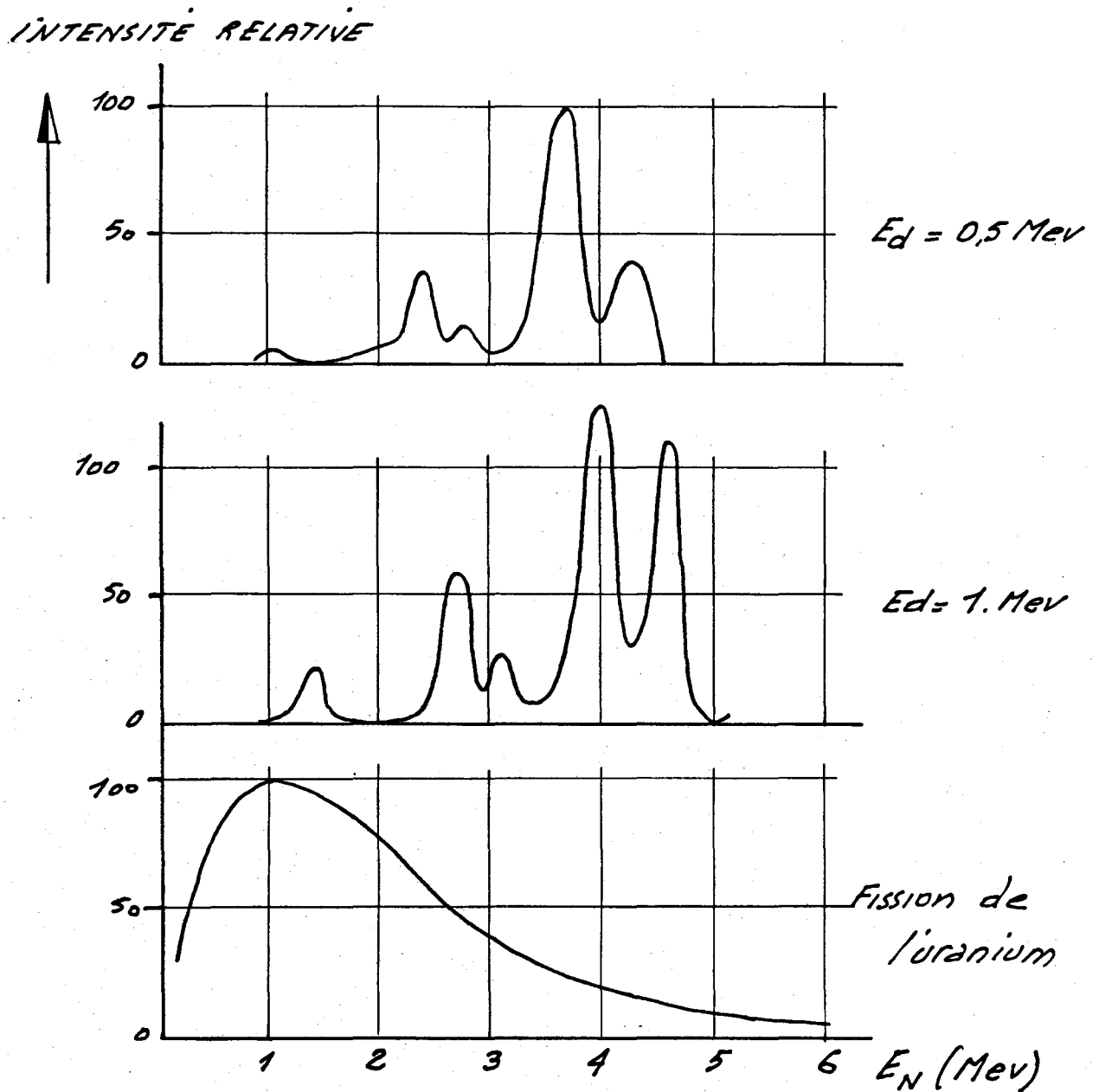


Figure 4

Energie des neutrons
monocinetiques des réactions
D.D et D.T (Théorique)





- Figure 5.

spectre des neutrons de la reaction $\text{Be}_9(d,n)\text{Be}_9$
et spectre de fission de l'uranium (comme référence)

TABLEAU III - rendements d'après BURRILL
et HIRSCHFIELD

Energie	D,T	D,D	D,Be
150 Kv	60	1	-
220 Kv	130	2,4	-
300 Kv	200	4,4	0,5
400 Kv	270	8	1,7
600 Kv	350	20	10
800 Kv	390	33	40
1000 Kv	410	50	140

TABLEAU IV - rendements d'après SEAGRAVE
et DUBUS

Energie	D,T	D,D
150 Kv	150	1
220 Kv	217	2,4
300 Kv	261	5,2
400 Kv	300	10,3
600 Kv	390	27

En principe, les deux tableaux sont relatifs aux mêmes chiffres : ils donnent, en prenant conventionnellement 1 pour le rendement en deutons-deutérium, les rendements à attendre de toutes les réactions pour les différentes énergies. Les renseignements du tableau III proviennent des rendements calculés par Hirschfeld, il y a trois ans. Le tableau IV donne ces mêmes chiffres: il y a une notable différence, en particulier pour 150 kilovolts. Ces chiffres du tableau IV proviennent des calculs qui ont été faits par Seagrave, (7) et chez nous, cette année, à l'occasion des travaux sur les cibles, par Monsieur Dubus (8). Pour 150 Kv, nous trouvons respectivement 60 + 150 comme rendement relatif. J'ai tenu à montrer ces différences pour vous dire qu'à mon avis, il faut être très prudent lorsqu'on cite des chiffres de rendement de réaction. Pour une puissance donnée appliquée à la cible, le rendement en neutrons, calculé d'après les tableau III et IV se présente comme indiqué sur les fig.6 et 7. J'ai supposé qu'une puissance donnée est appliquée à la cible et essayé de me rendre compte du rendement du kilowatt thermique expédié sur la cible. D'après le premier des ces deux tableaux, le nombre de neutrons maximum est obtenu pour une énergie de l'ordre de 350 KeV, alors que pour le second il est obtenu pour une énergie de l'ordre de 200 KeV. La discussion est ouverte de savoir où l'on doit se placer exactement. Mais il ressort de toutes façon de ceci, qu'à basse énergie, l'on doit attendre les meilleurs résultats de machines travaillant entre 150 et 400 Kilovolts, tout au moins en neutrons de 14 MeV.

Maintenant, je désire passer en revue des résultats assez récents et insister sur un certain nombre de difficultés. La production de quantités importantes de neutrons de 14 MeV pose deux catégories de problèmes, les unes concernant l'accélérateur et les autres la cible. Je parlerai un peu de l'accélérateur avant de passer aux cibles.

Figure 6

66.-

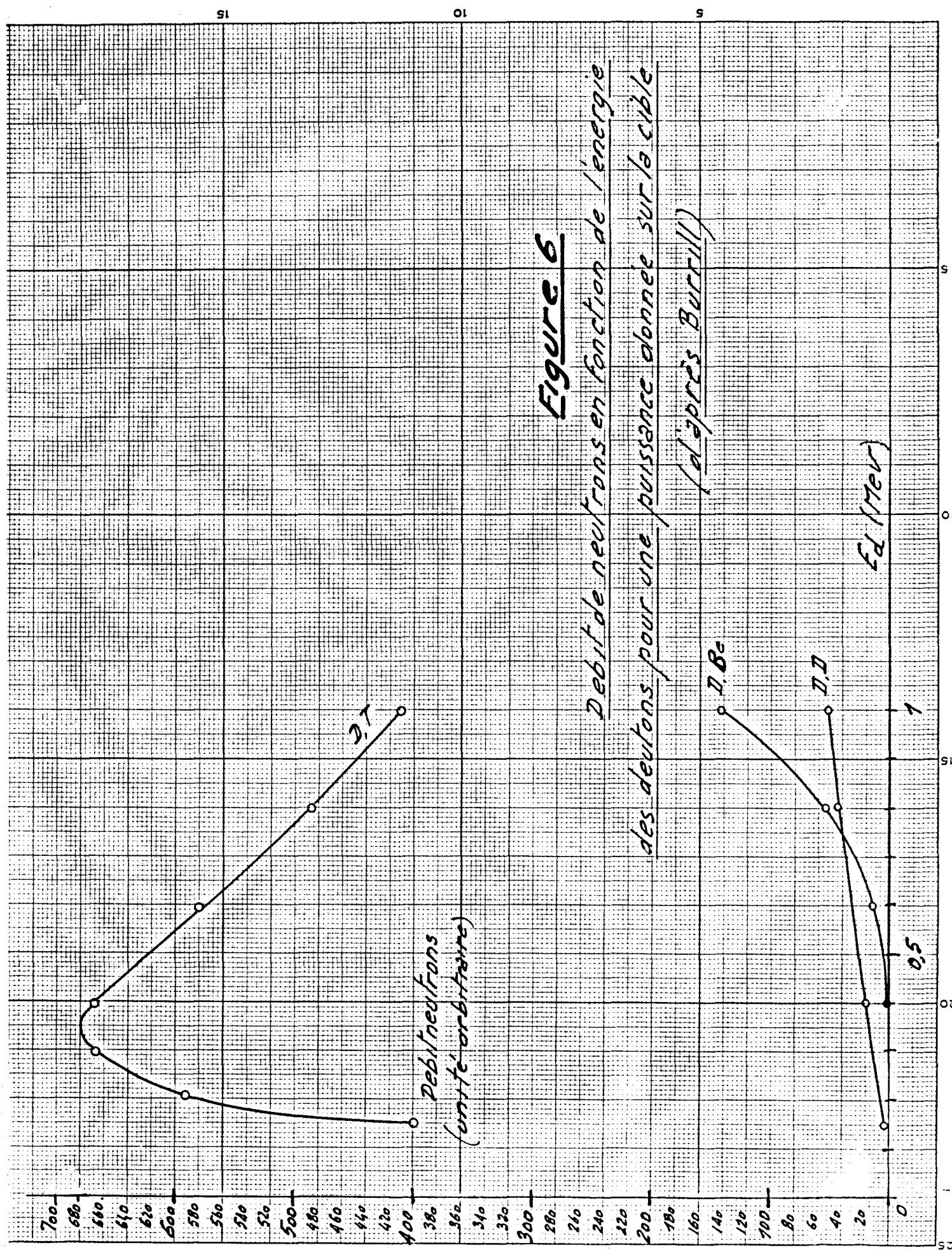
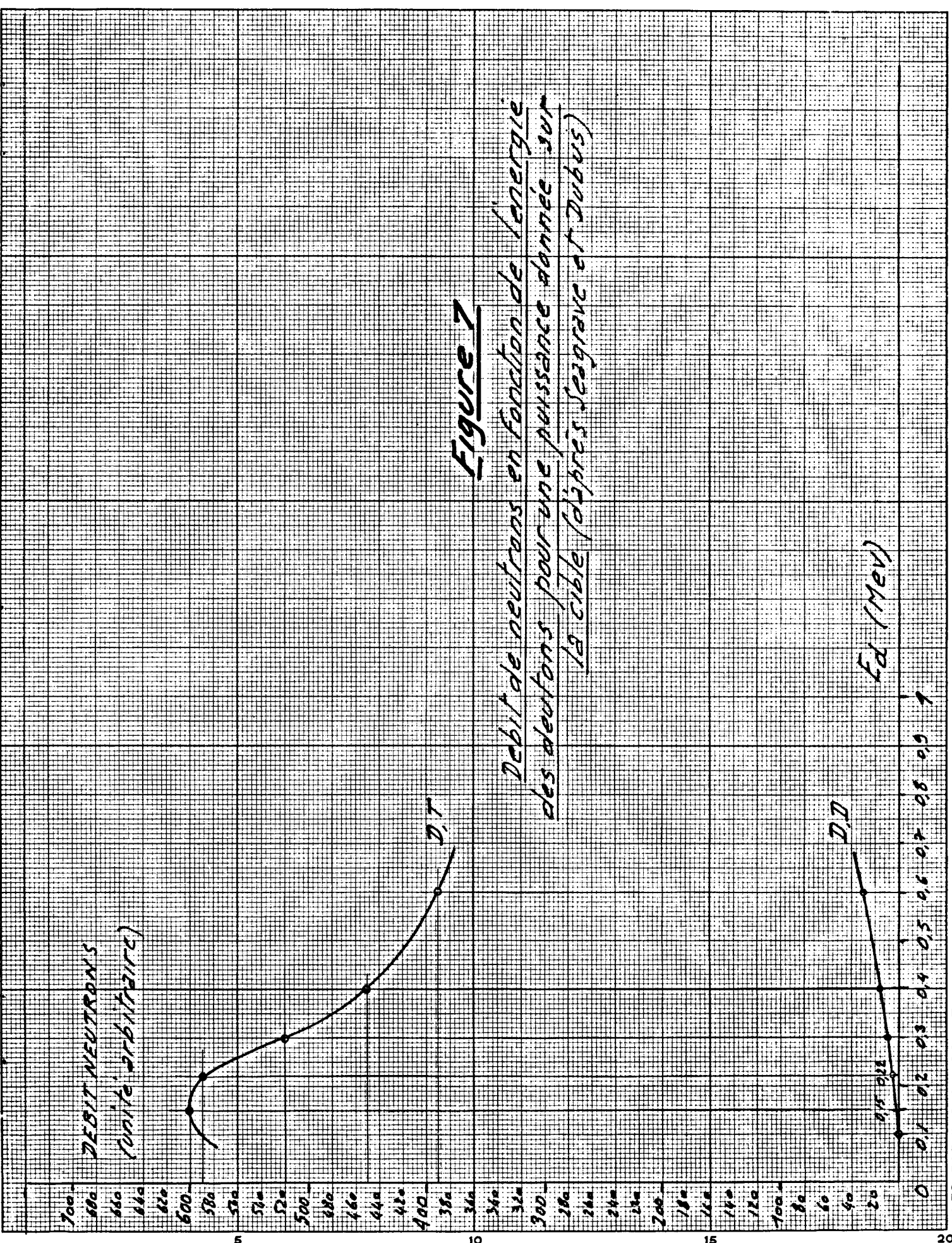


Figure 7



Il y a quelques années, les accélérateurs fournissant en continu 1 milliampère de courant de deutons étaient peu répandus. Maintenant la situation est différente. Nous distinguons 2 catégories de générateurs de neutrons. Les uns sont les différents types de machines conventionnelles utilisant le tube pompé, et des cibles interchangeable et fonctionnant soit en continu, soit en pulsé. Les autres sont des sources scellées, non pompées, à cibles non interchangeables, de taille beaucoup plus faible et fonctionnant généralement en pulsé. Pour ce qui est des machines conventionnelles, plusieurs constructeurs proposent maintenant un accélérateur de 150 kilovolts, fournissant en continu 2,5 milliampères de deutons. L'un au moins de ces constructeurs propose aussi un accélérateur de 400 kilovolts et 2 milliampères. Au laboratoire, des courants beaucoup plus importants ont déjà été produits. Des sources Duaplasmatron ou Pig fonctionnent jusqu'à 200 ou 300 milliampères en continu (9) et des configurations accélératrices, pour des faisceaux de ce genre, ont déjà été construites. (10)(11). Il est donc certain que les possibilités de production de faisceaux intenses de deutons en continu sont de plusieurs dizaines de fois supérieures aux possibilités d'évacuation thermique au niveau des cibles. A cause de cela, les machines qui fournissent de telles performances fonctionnent généralement en pulsé. Récemment, deux types de machines ont été présentés par EYRICH SCHMIDT de Karlsruhe, (12) et elles produisent respectivement 500 milliampères et 15 ampères de courant. (15 ampères de courant pendant seulement deux micro-secondes avec une répétition de 150 cycles par seconde). Ce que l'on peut reprocher à ces accélérateurs, c'est de ne pas être d'un maniement tout-à-fait aussi simple qu'un oscilloscope, et d'exiger encore pour leur conduite et leur entretien, un personnel spécialisé. Les sources scellées non pompées sont de taille beaucoup plus faible; généralement elles

sont utilisées en pulsations. Et les auteurs indiquent directement les performances en production de neutrons. Nous en reparlerons tout-à-l'heure. Leurs performances, en continu, sont nettement inférieures. Cela est dû, en partie, au fait qu'elles travaillent à des tensions égales, au plus, à 150 kilovolts. Mais aussi, la durée de vie des cibles limite les possibilités de travail en continu. Ce sont, finalement, essentiellement des problèmes de cibles que pose la production de neutrons.

C'est là, la conclusion de cette première partie de l'exposé. Nous demandons aux cibles de produire beaucoup de neutrons et de durer longtemps. Nous voulons aussi que les neutrons produits soient utilisables en flux élevé. Aussi, les cibles à faible densité, les cibles gazeuses, sont peu intéressantes; car le volume dans lequel sont émis les neutrons est important. Il nous faut des cibles compactes, denses en tritium. Je ne reviens pas sur tous les détails qui ont déjà été inventoriés par Monsieur Govaerts, lors de la précédente conférence. Naturellement, la recherche de composés denses a d'abord conduit à l'emploi d'eau tritiée et surtout des tritiures, (16) hydrures - dont Monsieur le Professeur Besson nous a parlé.- En revenant aux courbes des figures 2 et 3 qui concernent le rendement par micro-ampère, nous pouvons calculer le débit de neutrons à attendre pour un courant continu de deutons donné; et la puissance apportée par ce courant de deutons chauffe la cible et, les températures d'équilibre dépendent de l'efficacité du refroidissement. Mais je veux préciser quelques ordres de grandeur.

Les expériences que nous faisons actuellement dans ce domaine nous montrent qu'avec un système de refroidissement, qui laisse libre le dos de la cible. (le système de refroidissement refroidit seulement les bords), il faut attendre une élévation de température de l'ordre de 1 degré centigrade par watt/centimètre carré de faisceau. Ce chiffre peut être amélioré par des dispositifs autres si l'on accepte de ne plus accéder au contact même.

Il serait intéressant que les conférenciers nous disent, si les ordres de grandeur peuvent changer beaucoup avec d'autres systèmes de refroidissement. Car nous constatons tous, que notre cible de titane-tritié perd rapidement son tritium lorsqu'elle est chauffée au-dessus de 200 degrés. Cela correspond à environ 180 watts par cm^2 , et, en revenant aux indications que j'ai données tout à l'heure, en admettant que c'est vers 300 kilovolts que les kilowatts sont les plus efficaces, la densité de courant est alors d'environ 600 micro ampères, au cm^2 . Pour une cible d'un diamètre utile de 18 mm, le courant est donc limité aux environs de 1,5 milliampère et le débit initial, pour une cible riche, en tritium, reste à $5 \cdot 10^{11}$ neutrons/seconde en 4 m.-

Je considère que ce chiffre représente, actuellement, la limite en matière de production de neutrons, en continu, par les machines de la taille de celles dont j'ai parlé. Même si nous avons l'espoir d'améliorer beaucoup le refroidissement, il faudra, de toutes façons, rechercher des cibles plus stables. Il y a maintenant de nombreux auteurs qui ont proposé les terres rares (17). Et, effectivement, ainsi que cela sera discuté, des températures de fonctionnement de 300° ou 400° (18) sont maintenant accessibles. Monsieur Dubus, qui travaille sur ces cibles, à Grenoble, vous parlera des expériences qu'il a faites dans ce domaine, mais il sera intéressant de comparer les résultats avec ceux de Monsieur Guillaume, dont nous entendrons une communication relative à des cibles non-métalliques. Le débit n'est pas tout : le flux que nous pouvons obtenir est une caractéristique importante. On a cru constater, expérimentalement, que même si l'on place les échantillons très près des cibles (échantillons destinés à mesurer le flux de neutrons) le nombre de neutrons au cm^2 est inférieur au dixième du débit

total, et même parfois au cinquantième. On devrait tout de même attendre plus et c'est là une question, je crois, que doivent se poser expérimentateurs et théoriciens :

" Pourquoi cette différence ? ", " Est-ce que cela ne mérite pas un examen attentif ? ". C'est peut-être que nous avons tort de nous référer au débit en $4 \frac{1}{2}$ et qu'il faut revenir à une notion plus saine de flux, seule intéressante pour l'utilisateur. Récemment, je crois, à College Station, Monsieur Wainardi a proposé une convention pour la mesure des flux; et nous serions très heureux qu'au cours de ces journées, il puisse être à nouveau question de cette convention et qu'elle soit, à nouveau, exposée officiellement. Enfin, quel que soit le critère qui sert à définir la production de neutrons par la cible, il est bien connu que les cibles sont usées alors même qu'une infime quantité du tritium initialement présent a été effectivement consommée pour la production de neutrons. Il y a pire, et nous l'avons maintes fois observé, sur les cibles de titane ou d'erbium, en maintenant la cible à une température où l'hydruure doit, raisonnablement conserver une bonne stabilité, l'usure est encore très rapide. Nous pourrions communiquer quelques résultats fragmentaires à ce sujet, qui montrent que l'élévation de température, ainsi que Monsieur BESSON l'a dit tout à l'heure, n'est pas la seule cause

importante de destruction des cibles, et que la pulvérisation ou la dislocation du matériau, sous le bombardement des deutons, est un phénomène absolument capital. Pour ma part, j'attends avec un très grand intérêt la communication de M. Lomer, qui est le premier, je pense, à se préoccuper effectivement de cette dislocation. Et je dois dire ma propre inquiétude devant l'existence de ce que l'on pourrait appeler le sputtering, car, pour ma part, je ne vois guère de moyen de l'éviter sur les cibles que nous connaissons; et je crains que nous ne soyions obligés de l'admettre comme une limitation physique intangible de la durée de vie des cibles. Comme l'a dit Monsieur Besson, peut-être allons nous cesser la course à l'hydrure thermiquement le plus stable pour faire la chasse, maintenant, aux composés qui résistent le mieux au sputtering. A ce sujet, il serait intéressant pour nous de connaître les derniers résultats de Monsieur Fabian - je pense qu'il est là -, relativement à des hydrures protégés par un film d'aluminium, déposé au-dessus de la cible. Je pense qu'en matière de conservation aussi bien sous vide qu'à l'air atmosphérique, ce film d'aluminium a une importance capitale. Puisque nous parlons de conservation, vous savez que la qualité du vide dans l'accélérateur joue un grand rôle et certaines pollutions, non pas seulement par l'huile des pompes de diffusion mais par les oxydes de titane des pompes ioniques, ont été observées. Je dois rappeler à ce sujet que les vides les plus propres que l'on

sache faire actuellement sont ceux que l'on obtient avec des pompes turbo moléculaires, selon l'expérience qui en est poursuivie depuis 18 mois à Desy à Hambourg, et à l'Institut Max Planck de Heidelberg, sur un Van de Graaff tandem. Je me permettrai de recommander, aussi bien à ceux qui fabriquent les cibles qu'à ceux qui les utilisent sur accélérateurs, d'expérimenter ce type de pompe, afin de voir si les pollutions sont diminuées au point d'augmenter l'adhérence des supports, par exemple, ou la durée de vie de la cible. Compte tenu de toutes ces limitations, j'ai recueilli quelques chiffres qui concernent ce que l'on peut attendre en matière de production de neutrons à basse énergie. En continu, des débits $4\frac{1}{2}$ de 10^{11} neutrons/seconde peuvent être tenus pendant des heures: c'est, en fait, également le débit-crête de nombreuses machines fonctionnant en pulsé. Par exemple, celle utilisée par Utzinger à Wurenlingen ou celle de Morton, au Laurence Radiation Laboratory.(19). Nous avons eu ces renseignements, il y a peu de temps, au congrès de Karlsruhe sur les neutrons pulsés. Lorsque les durées des pulses diminuent beaucoup, les débits de crête peuvent devenir beaucoup plus importants. Je crois que M. Lomer utilise une source qui fournit 5.10^8 neutrons dans un pulse de 10 micro-secondes ce qui correspond, en crête à 5.10^{13} . Monsieur Reifenschweiler propose une source qui a sensiblement cette puissance, et les machines pulsées de Messieurs EYRICH et SCHMIDT, que j'ai citées déjà, produisent

$2,5 \cdot 10^{14}$ neutrons/seconde en crête, dans un pulse de plusieurs dizaines de micro secondes. A ma connaissance, ces débits sont les plus élevés que l'on sache obtenir actuellement. J'espère me tromper et susciter des protestations parmi les conférenciers ou des personnes assistant à ces conférences. Il sera, en tout cas, intéressant de discuter de deux points concernant ces machines : d'une part, quel est le flux qui correspond à ces chiffres, dans les différentes géométries utilisées et, d'autre part, quel espoir a-t-on d'améliorer la technologie pour obtenir des pulses de plus en plus longs avec ces débits-crêtes, jusqu'à idéalement aller au fonctionnement en continu.

Avant de terminer, je vais rappeler quelques points particuliers à la réaction DD. Nous avons vu que pour la réaction DD, il est intéressant de monter l'énergie de la machine.

L'apparition de machines de 400 kilovolts et de 600 kilovolts, à grand courant de faisceau, doit donner un regain d'intérêt à cette réaction DD, et faire réapparaître les auto-cibles, sur lesquelles j'avoue avoir peu de renseignements. A la lumière de l'exposé de M. Besson, je crois que la formation des auto-cibles, par bombardement des deutons sur de l'erbium, par exemple, initialement non chargé en deutérium, pourrait peut-être donner quelque lumière sur le phénomène de dislocation, car il n'y a pas de doute, tout le monde le sait bien, dans ces conditions il se forme effectivement du deutérure d'erbium.

La réaction DD est intéressante à un autre titre - et, cela, nous l'avons vu à Karlsruhe - les neutroniciens se plaignent amèrement des sources parasites de neutrons qui, dans un accélérateur, proviennent des deutons frappant les diaphragmes, par exemple, ou les dispositifs de déviation du faisceau.

Je crois qu'une discussion intéressante consisterait à mettre en commun les idées que nous avons ou les mesures que nous avons pu faire sur la formation d'hydrures sur les différents matériaux, et faire une bonne fois justice d'un certain nombre d'idées - qui sont peut-être bonnes ou mauvaises : il serait intéressant de le savoir - idées qui concernent la plus ou moins grande capacité d'absorption de matériaux tels que le fer ou le tantale, à des températures élevées. En somme, faut-il ou non faire nos enceintes dans ces matériaux et faut-il ou non les chauffer ?

J'ai fait un tour très rapide de ces problèmes et j'ai voulu seulement attirer votre attention sur quelques points un peu précis ou qui me sont particulièrement chers. J'espère que les conférenciers qui nous parleront des autres cibles que les cibles tritiées, ne m'en voudront pas d'avoir limité mon sujet au domaine que je pratique.

Je crains que, dans ce domaine, les cibles tritiées classiques ne puissent plus être considérablement améliorées, tout au moins dans leur durée de vie, aussi longtemps que l'on ne

pourra pas diminuer considérablement l'effet de sputtering. Cela ne veut pas dire que de grands progrès ne puissent pas être réalisés dans des domaines connexes; et Monsieur Besson et nous-même avons suggéré d'utiliser la perméabilité à l'hydrogène de certains matériaux comme le palladium pour en constituer des cibles, dans lesquelles l'hydrogène serait présent (disons hydrogène, deutérium ou tritium - sous forme gazeuse) derrière une membrane bombardée par les deutons; la diffusion de cet hydrogène ou de ce deutérium pourrait maintenir en régime permanent, une concentration suffisante dans la couche de surface pour assurer la production de neutrons par une cible indéfiniment rechargeable. Je laisse cette idée à votre sagacité et, éventuellement, à votre expérience. Puisque nous avons tant de mal à réaliser ces cibles que nous devons en arriver à imaginer des solutions de ce genre, ma conclusion sera de les utiliser au mieux, en soignant la qualité et de nos faisceaux d'accélérateurs, et du vide dans nos machines.

Je vous remercie.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- | | |
|--------------------|--|
| 1.- E.A. BURRILL | " Neutron production and protection ",
H.V.E.C. Technical Documentation 1964. |
| 2.- J. HIRSCHFIELD | " Neutron Output Measurements,
H.V.E.C. report E-233, 1960 |
| 3.- S.W. ROSE | " The production of neutrons with a
2 MeV electrostatic accelerator ",
USNRDL - TR-15 (L954) |

- 4.- A.I.SHPETNI " Energy and Angular Distribution of Neutrons Emitted in $\text{Be}^9(\text{d},\text{n})\text{B}^{10}$ reaction ", Soviet Phys.J.E.T.P., (1957)
- 5.- B.T.PRICE, C.C.HORTON, K.T.SPINNEY " Radiation Shielding ", Pergamon Press (1957)
- 6.- J.HIRSCHFIELD " Neutrons from T (d,n) reaction " H.V.E.C. Report E-233 A 3, (1962)
- 7.- J.D.SEAGRAVE, E.R.GRAVES, S.J.HIPWOOD, C.J.Mc DOLE " D (d,n)He³ and T (d,n)He⁴ neutron source handbook ", LAMS-2162, (1957)
- 8.- G.BREYNAT et M.DUBUS Communication présentée à la même Conférence.
- 9.- C.W.BLUE, N.H.LAZAR, O.D.MATLOCK, Bulletin of American Physical Society, 9 N° 3, 1964, p.315 article H1.
10. O.B.MORGAN, G.G.KELLEY, R.C.DAVIS, même référence article H.5
- 11: M.RICHARD, N.KEEVER, A.YOKOSAWA R.S.I. 33, 7 - 1962
12. W.EYRICH, A.SCHMIDT Proceedings of Symposium on pulsed neutron research, KARLSRUHE, Mai 1965
13. C.W.ELENGA et O.REIFENSCHWEILER, même référence.
14. P.D. LOMER et alt., même référence.
15. R. BOURION même référence.
16. E.R.GRAVES, A.A.RODRIGUES M.GOLDBLATT Rev.Sc.Inst. 20,587 (1949)
17. G.BREYNAT, M.DUBUS, R.GERBIER, J.F.MAURIN B.I.S.T./C.E.A., juin 1965
R.ZEGHERS NT ACC/63-11 , CEA-CEN/G , 1963
L.N.LARGE et H.HILL Nucl.Inst.and Methods , 34 (1965)
18. REDSTONE et ROWLAND Nature, 201 (1964)
19. Symposium sur la recherche à l'aide des neutrons pulsés, KARLSRUHE, mai 1965
20. Dépôt de Brevet français N° 11.186 du 30 mars 1965

Monsieur CORNUET

Je vous remercie, Monsieur GERBIER, pour cet exposé fort intéressant; je vois que vous aviez énormément de choses à dire et ceci m'enlève toute inquiétude concernant la discussion qui aura lieu cet après-midi, car vous avez été amené à poser beaucoup plus de questions qu'à présenter de solutions aux problèmes que pose la production des neutrons à l'aide d'accélérateurs de basse énergie. Si vous le voulez bien, pour rester en accord avec le thème général du colloque, nous passerons directement, maintenant au conférencier suivant, qui est Monsieur BROERSE, et s'il nous reste du temps avant l'interruption du déjeuner, nous commencerons à aborder, dans l'ordre qui est donné sur le plan de la page 3 de votre programme, les discussions. Je vous remercie encore Monsieur GERBIER et je donne la parole à Monsieur BROERSE qui va présenter une communication ayant pour titre :

FAST NEUTRON IRRADIATIONS OF LIVING CELLS
AND INTACT ANIMALS: INADEQUACIES OF EXISTING
TARGETS.

Monsieur BROERSE

In radiobiology fast neutrons are of interest because they dissipate energy mainly by recoil protons at a linear ion density, which is roughly a factor of 10 higher than that obtained with fast electrons produced by X- or γ -rays. Consequently several radiobiological responses to fast neutrons are different

from those produced by X- or γ -rays. For irradiations of biological objects with monoenergetic neutrons, we used a 400 kV van de Graaff electrostatic accelerator (High Voltage Engineering type AN 400). The deuteron beam at a maximum current of 150 μ A impinges on a titanium target containing deuterium or tritium. The energy and yield of the resulting neutrons depend on the angle of emission (1). The neutron energies were measured with a neutron spectrometer employing a stilbene crystal. The neutron flux density and the absorbed dose at the sites of interest were measured by means of sulphur activation detectors and tissue equivalent ionization chambers flushed with tissue equivalent gas. The total output of our generator was measured to be $2 \cdot 10^{10}$ neutrons/sec for the D-T reaction while for the D-D reaction the output was found to be a factor of 100 lower.

The results of some of our experiments are presented in figure 1, where the survival of human cells is given for 15 MeV neutron irradiation and 250 kVp X-irradiation, as a function of the dose in rads. No details will be discussed here, but it may be pointed out that doses required to produce important effects are of the order of 100 rads. If the irradiated objects are situated at a distance of 50 cm from the target, this relatively high dose requires an irradiation time of about 300 minutes for 15 MeV neutrons with our neutron generator. It will be clear that this irradiation time is too long, although sometimes not

completely prohibitive for research purposes. However, if 15 MeV neutrons are ever to be employed for the radiotherapy of tumours, dose rates which are a factor of 50 higher are certainly required. It is important to note that the radiotherapy of tumours is not a remote possibility. Our recent experimental results indicate that one of the factors which presumably prevents the complete cure of tumours by ordinary X- or γ -rays, namely the oxygen effect, is present to a much smaller extent in irradiations with fast neutrons (2). The oxygen enhancement ratio (defined as the ratio of absorbed doses required for an identical percentage of survival for anoxic and well-oxygenated cells) for 15 MeV neutrons was measured to be equal to 1.6, while in the same experimental conditions the oxygen enhancement ratio (OER) for 250 kVp X-rays was found to be 2.5 (see figure 1). These values show that 15 MeV neutrons have a significant advantage over X- or γ -rays, with regard to the killing of anoxic cells in a tumour. Before these neutrons might be employed for the radiotherapy of tumours, however, targets have to be developed which give adequate yield and reasonable half-life. In view of the possible clinical applications of neutrons, we have investigated the characteristics of the targets used for our neutron production. The titanium tritide and deuteride targets were obtained from the Radiochemical Centre, Amersham, England. The thickness of the titanium on the copper discs varied between 2 and 2.5 mg/cm². Employing new targets for our neutron generator, the 150 μ A beam of 400 keV deuterons was measured to produce a total output of $2 \cdot 10^{10}$ neutrons/sec for the D-T reaction while for the D-D reaction only $2 \cdot 10^8$ neutrons/sec were obtained. However, during operation the output of neutrons from both the D-T and the D-D reaction decreases continuously. As far as the tritide targets are concerned this decrease may easily be understood. Owing to the bombardment tritium is removed from the upper layer penetrated by the deuterons beam.

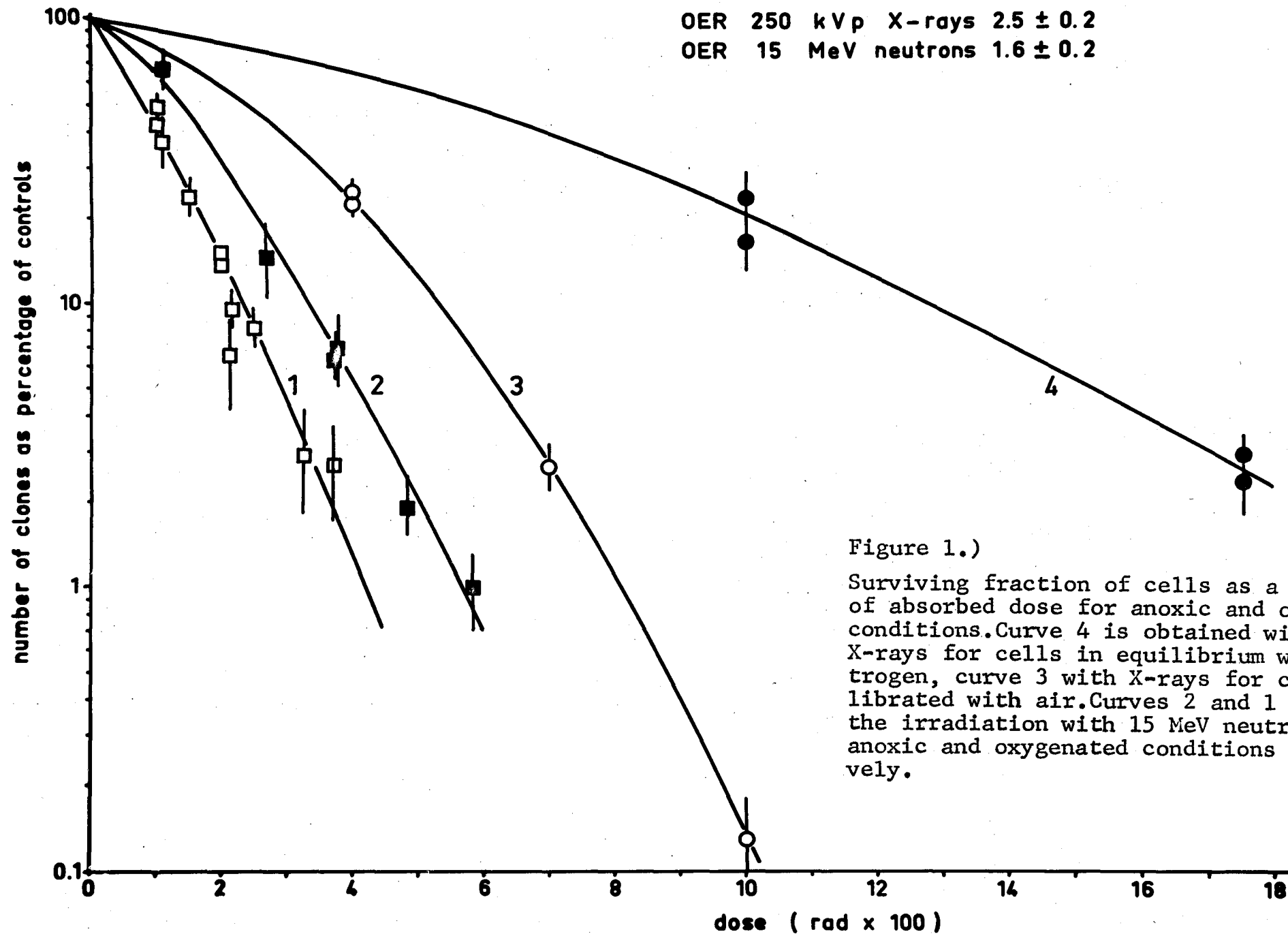


Figure 1.)

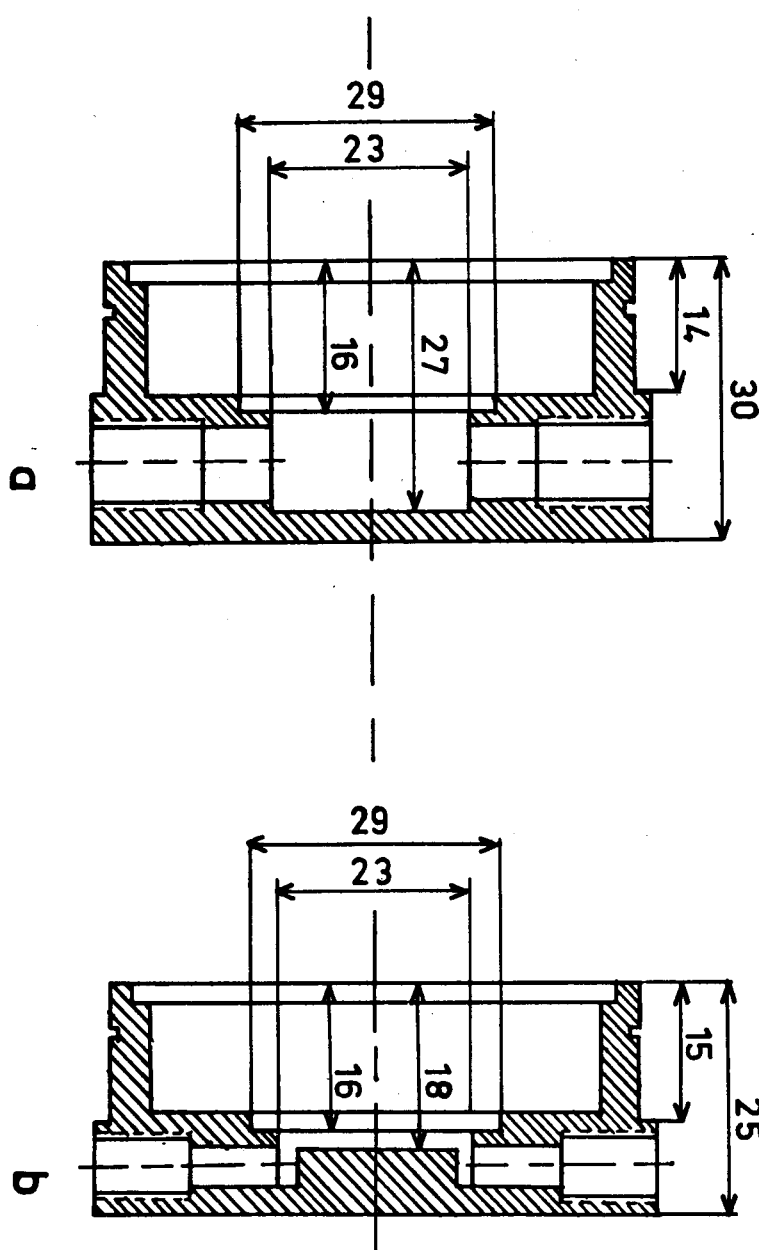
Surviving fraction of cells as a function of absorbed dose for anoxic and oxygenated conditions. Curve 4 is obtained with 250 kVp X-rays for cells in equilibrium with nitrogen, curve 3 with X-rays for cells equilibrated with air. Curves 2 and 1 pertain to the irradiation with 15 MeV neutrons for anoxic and oxygenated conditions respectively.

However, with regard to the deuteride targets our experimental findings do not agree with the increase of the neutron yield which would be expected in view of the reloading of the target with deuterons of the incident beam (3).

Employing the target holder supplied by the manufacturer (shown in figure 2a), we found a half-life (i.e. the time interval in which the neutron output is reduced to half the initial value) of about 17 hours for our tritium targets in which 60 Watts of energy is dissipated over an area of 2 cm^2 . Autoradiographs of targets used for our neutron production show the removal of tritium from the irradiated area of the target. It should be realized, however, that in this way the tritium content of the target is only determined up to a depth of about $0,6 \text{ mg/cm}^2$ (the β -particles emitted by tritium have a maximum energy of 18 keV; the range of β -particles of this energy is equal to 0.6 mg/cm^2 in aluminium (4)). In order to find out whether the tritium has been lost by the target, both the gas released from the fore pump and the pump oil were examined for tritium activity. The exhaust opening of the pump was connected by a flexible rubber tube to a tritium gas monitor (Tritium Monitor Model TSM-91B, Atomic Accessories). The tritium activity in the gas during operation at full current was found to be below $20 \cdot 10^{-6} \mu\text{C/cm}^3$. Consequently in 17 hours, at a pumping rate of 40 l/second and a pressure of 10^{-5} mm Hg , no more than $10^{-3} \mu\text{C}$ of tritium could have been removed from the acceleration tube into the air. This value indicates that most of the decrease in yield is not due to the discharge of tritium into the released gas. The tritium activities of oil samples taken from the vacuum pumps were measured with a liquid scintillation spectrometer (Nuclear Chicago Model 725). A maximum tritium activity of $0.3 \mu\text{C/cm}^3$ in a total volume of 100 cm^3 was found in the oil of the diffusion pump. The oil filling of the diffusion pump was employed over a period of time in which several targets (each containing 9 curies of tritium)

Figure 2.) Schematic drawings of the target holders.

Figure 2a represents the target holder supplied by the manufacturer; the target holder with improved cooling characteristics is shown in figure 2b (all quantities expressed in millimetres).



were employed. The tritium levels of both the released gas and the pump oil do not provide an indication of the place where the tritium might have been trapped. In addition it may be noted that the tritium levels of the oil and the released gas do not actually present a health physics problem because the maximum permissible concentration in the gaseous phase is $2 \cdot 10^{-3} \mu\text{C}/\text{cm}^3$ for $^3\text{H}_2$ gas and $5 \cdot 10^{-6} \mu\text{C}/\text{cm}^3$ for $^3\text{H}_2\text{O}$ vapour, while the maximum permissible concentration in water is $0.1 \mu\text{C}/\text{cm}^3$ (5).

Other explanations of the decrease in neutron output might be found in either the consumption of tritium in the neutron producing reaction or the replacement of tritium atoms by the incident deuterons (6). Taking into account that the 400 keV deuterons have a range of about $0.7 \text{ mg}/\text{cm}^2$ (4) it may be calculated that about $5 \cdot 10^{19}$ tritium atoms might either be used in the nuclear reaction or be driven out of the area penetrated by the deuteron beam. Starting from the amount of tritium atoms which are present in the layer penetrated by the incident deuterons and which may be consumed in the nuclear reaction, a target life of several hundreds of thousands of hours should be obtained. If the complete target area was used and every incident deuteron would replace a tritium atom, the maximum life would be equal to 14 hours. Neither calculations correspond with the experimental findings for our targets, which were only irradiated over half the target area. A possible explanation might be that a diffusion mechanism determines the duration of life of the target in dependence on its surface conditions and its operating temperature. At some fairly critical temperature the tritium may be free to diffuse to deeper titanium layers without rapidly escaping from the surface (3, 7). Although we have not attempted a thorough investigation of this problem, it could be

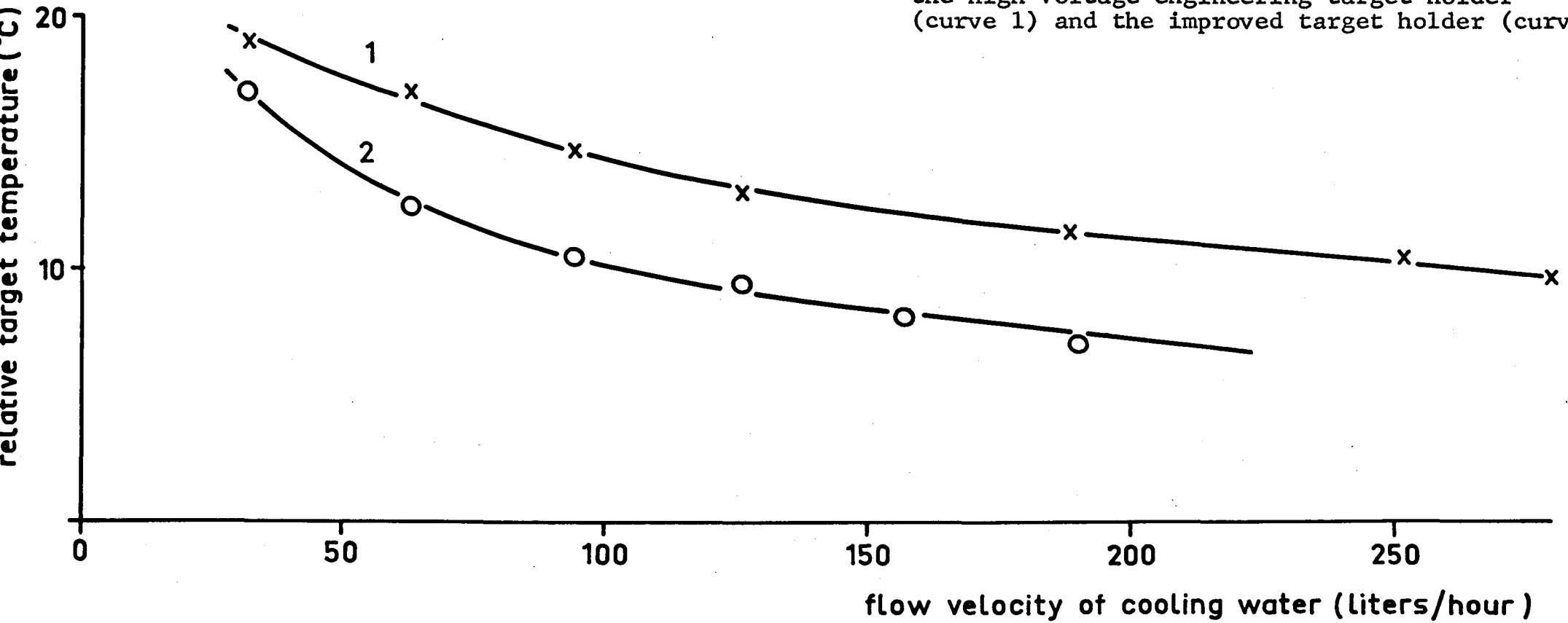
concluded that better cooling might result in an increase in target half life.

In order to increase the heat transfer to the cooling water, we have constructed a new target holder in which a thin water slab was forced to stream at high speed along the copper backing of the target (see figure 2b). The characteristics of both cooling systems were compared by means of a thermal analogon of the deuteron beam incident on the target (8). A copper rod of 1 cm diameter is heated by an electrical element. A copper disc of equal dimensions as the targets used, is soldered to the end of the rod. This copper disc could be fixed in the target holders. A thermal insulation of asbestos was wound around the electrical element in order to reduce the heat transfer from the rod to the air. Thermocouples (copper-constantan) were mounted at regular intervals along the rod to measure the temperature at different positions. In figure 3 the temperatures measured at the end of the rod are given as a function of the flow velocity of the cooling water for a power dissipation of 60 Watts from the electrical element to the copper rod. Although the temperature measured at the end of the rod may not represent the actual target temperature during deuteron bombardment, this method makes possible a rapid comparison of the cooling capacities of different target holders. From figure 3 it may be concluded that the new target holder is preferable because of its better cooling action. The use of this improved target holder in our neutron generator was found to result in a maximum increase of the target half-life by a factor 2.

Our findings with regard to target half-life refer to a total yield of $2 \cdot 10^{10}$ neutrons/sec. However, in order to obtain reasonable dose rates required for biological and medical applications, neutron generators with a total yield

Figure 3.

Target temperature (relative to the temperature of the cooling water) as a function of the flow velocity of the water, obtained with the High Voltage engineering target holder (curve 1) and the improved target holder (curve 2)



of 10^{12} neutrons/sec have to be employed. This output requires an energy dissipation of about 4000 Watts in the target. On the basis of the maximum target half-life of 30 to 40 hours obtained for an energy dissipation of only 60 Watts, it must be concluded that for energy dissipations of the order of several thousands of Watts the existing targets are inadequate to obtain a half-life in excess of 30 minutes.

REFERENCES

1. Broerse, J.J. and Barendsen, G.W., Proceedings of the IAEA Symposium on Biological Effects of Neutron and Proton Irradiations, Vol. I., 309, IAEA, Vienna (1964)
2. Broerse, J.J. and Barendsen, G.W., Nature, 206, 208, (1965)
3. Coon, J.H. Targets for the Production of Neutrons, In Fast Neutron Physics, Part I (Marion, J.B. and Fowler, J.L. eds.) Interscience Publishers, New York, (1960).
4. Friedlander G. and Kennedy, J.W., Nuclear and Radiochemistry, John Wiley, New York, (1955).
5. Report of Committee II on Permissible Dose for Internal Radiation, ICRP Publication 2 (1959).
6. Bounden, J.E. Lomer, P.D. and Wood, J.D.L.H., Nuclear Instr. Methods, 33, 283, (1965)
7. Accelerators Targets Designed for the Production of Neutrons, Proceedings of an EURATOM Meeting held at Liège, EUR. 1815. d, f, e. (1964)
8. Rethmeier, J. and Meulen, D.R. van der, Nuclear Instr. Methods, 24, 349, (1963).

Monsieur CORNUET

Je vous remercie Monsieur BROERSE de ce très intéressant exposé qui nous apporte de nouveaux renseignements sur l'utilisation et l'expérimentation des cibles et qui va nous permettre si vous le voulez bien d'entamer maintenant la discussion afin d'alléger le programme de cet après midi. Il nous reste environ une demi-heure, je pense que nous pourrions entamer dès maintenant la discussion du point n° 1.1 qui concerne les méthodes générales de préparation des cibles, leurs caractéristiques actuelles, soit en cibles minces, soit en cibles épaisses. Y a-t-il soit des questions, soit des interventions portant sur ce premier point ? Je vous rappelle que ces interventions ou ces discussions doivent porter sur des faits nouveaux par rapport à ceux qui ont été présentés au colloque de l'année dernière. Nous souhaitons discuter ici des nouveaux renseignements obtenus, des problèmes actuels et laisser sous silence ce qui a déjà été présenté au cours du congrès précédent.

Personne n'a rien à dire sur les dépôts superficiels - la préparation des cibles - l'influence du vide lors de l'imprégnation, les flux obtenus ? Je pense qu'il faut que quelqu'un commence à intervenir!

Monsieur MORGAN

I think one point which has not been brought out by most of the speakers to present is the quality of the beam. Is it monoatomic or is it diatomic or is it a mixture of both ? I think this is extremely important particularly when one talks about sputtering or energy deposition in the target.

Monsieur CORNUET

Je crois que vous aborder, Monsieur, d'un seul coup plusieurs points qui viendront après, mais plutôt que d'attendre une question concernant le premier point, je crois quand même intéressant de discuter cet aspect de la composition du faisceau. Quelqu'un a-t-il, sur cet aspect du problème, des observations à faire ?

Monsieur BROERSE pourrait peut-être, partiellement répondre à la question qui vient d'être posée, parce que je crois que, dans votre exposé, vous avez fait allusion à des rendements différents, suivant que la réaction avait lieu en DT ou en DD.

Monsieur BROERSE

" In our neutron generator a radio-frequency ion source was employed. According to my information the beam should be fairly monoatomic, but I have no accurate data on this point ".

Monsieur REIFENSCHWEILER

Ich nehme an, dass Sie einen hohen Prozentsatz an Atomionen gehabt haben, da Sie eine Hochfrequenzionenquelle benutzt haben. Es ist bekannt, dass Hochfrequenzionenquellen einen Prozentsatz von 30% bis 90% an Atomionen geben, wenn sie unter sauberen Bedingungen betrieben werden.

Monsieur LOMER

I was rather put off at first because I realized that this section is on classical tritiated targets of zirconium and tritium and thought perhaps I could make one or two comments on Dr. BROERSE'S talk. Some years ago we first became interested in the possibilities of neutron radiotherapy at energies of 14 MeV. The early work on this work on fast neutrons at Hammersmith indicated quite a great potentiality for neutron radio-therapy

and we saw the possibility of using 14 MeV neutrons obtained with relatively simple equipment. For this reason we have been collaborating with the Christie Hospital at Manchester which pioneered in the United Kingdom the use of high energy gammas for radio-therapy and we are now interested in the possibility of fast neutrons. Quite independently of us the Christie Hospital had arrived at the conclusion that a source of 10^{12} neutrons per second was needed for this work and at SERL we had at the same time, and this is about 1962, arrived at a level of 10^{12} neutrons per second as being the ultimate level of neutrons which could be produced with a conventional sort of accelerator using the DT reaction. Now in coming to that conclusion we had of course thrown over all the other ideas of using a source of deuterons on a tritium loaded target, because the amount of gas you are pumping into the target under these conditions is many hundreds of times greater than that held in the target and half lives at 10^{12} would be at the order of seconds or minutes and certainly not hours, and so I think the first basic assumption one must make is that you are using a mixture of deuterium and tritium in both the ion beam and the target, and it is only then that you can start to look at the limitations then imposed by the target. Well we looked at most of the limitations and we are still looking at them and I shall be talking about some of this when we get to sputtering, but we still remain with the conclusion that a source of 10^{12} neutrons per second will be obtainable using the DT reaction. At present our work has reached a level of 10^{11} neutrons per second and tubes, sealed off tubes, of this sort are going to be used at Christie's for radio-therapy during the coming year or so.

Monsieur BROERSE

I would like to ask to Dr. LOMER whether he can give us some information on the half-life of the targets, used for the production of 10^{11} neutrons per second.

Monsieur LOMER

From our present experiments we expect a target life of one hundred hours at a neutron output of 10^{12} n/sec.

Monsieur STEELE

I would like to comment that 100 hours of operation at 10^{12} neutrons per second would be a tremendous improvement over presently available commercial equipment. With either of our several accelerators, one RF ion source and one P.I.G. ion source, we are able to operate only at the 10^{11} n/sec level. Characteristically, with our RF ion source machine we begin our irradiations at 150 kv acceleration potential and one milliamperere of beam current. During the course of irradiations we gradually increase the beam current to maintain the 10^{11} n/sec level. The maximum beam for our machine is 2,5 milliampères and this level is reached in about one hour. This gives us a useful 10^{11} n/sec target life of about 1.7 milliamperere hours.

Our P.I.G. ion source machine will produce only one milliamperere of beam but it does have a 200 kv power supply. Our experience with this machine is limited but a neutron output of 10^{11} n/sec can be maintained for one hour by using an accelerating potential of 200 kv and gradually increasing the beam current from 500 microamperes to the maximum, 1 milliamperere. The rate of target decay appears to be about the same.

Monsieur PERKIN

While we are quoting figures I would like to quote a few more. We have a 300 KV, ICT made by HVEC giving a total current of 13 milliamps. With 10 milliamps. on target we get 10^{12} neutrons per second. The target half-life is 1 800 milliamps. hours. The target is 650 centimeters squared in area containing 2.000 curies of tritium as titanium tritide on a rotating wheel.

The spot size is 5 centimeters diameter. When the wheel is static the half life is only 60 milliamps.hours. We hope to improve this performance by using erbium tritide made under cleaner conditions. One of the problems with this source is the high level of radiation due to induced activity in the target area.

Monsieur CORNUET

Messieurs, je saisis cette occasion pour revenir au programme et demander si quelqu'un a des observations à faire sur la préparation de cibles de ce genre, et d'une manière générale, d'ailleurs, sur la préparations des cibles. Il y a, dans la salle, quelques producteurs de cibles : veulent-ils intervenir ?

Il paraît beaucoup plus simple de faire parler des utilisateurs que les producteurs....

Monsieur REIFENSCHWEILER

Ich habe eine Frage an die Herren, die Erbiumtargets gebrauchen. In welcher Form ist Erbium zu erhalten ? Kann man es z.B. in Form von Draht bekommen, oder in welcher Form wird es sonst benutzt ? Kann vielleicht Herr LOMER uns diese Frage beantworten ?

Monsieur LOMER

We have been using erbium for a number of years as a target material and the sealed off tubes that we work with and have developed contained erbium targets in some cases. We obtain erbium in the form of wire from Johnson Matthey and the techniques of evaporation etc. are basically similar to those of titanium though of course there are particular tricks with each of these materials.

Monsieur WAINERDI

There has been discussion this morning of neutron levels the 10^{12} has been used number ten to the eleventh and there was one reference to the Texas convention on the measurement of neutrons. First of all I want to start off by saying this is not a product of my work that is the convention but is rather the result of some efforts by M.LAVERLOCHERE and Mr. ANDERS and several others at the meeting who felt the need for this convention the point is of course that all you can measure externally is the flux as an induced activity in copper or in something else, now you can make some assumptions as to isotropicity and so forth and try to develop a total yield and I guess there are exotic physics methods for total yield but from the usual point of view the crucial number is the number of neutrons per square centimeter per second in a useful position and it is to that goal that the Texas convention is dedicated, I might say that at this point the convention has been adopted by about forty or fifty of the leading activation analysis and neutrons generator laboratories of the world. I believe M.LAVERLOCHERE has a copy if he does the any of you who wish to see it or ascribe to it are welcome to but its whole goal is to establish a starting place where we can get numbers which are comparable because they strongly suspect from some of the things that have been said this morning that some of the numbers are on different basis of comparison.

Monsieur LAVERLOCHERE

J'ai effectivement une copie de la convention du Texas, qui concerne les flux de neutrons 14 MeV et je comptais simplement en donner les caractéristiques dans le point e) qui figure dans votre programme, à la page 4, point qui concerne les mesures de flux de neutrons émis.

Monsieur CORNUET

Mesdames, Messieurs, je vous remercie. Je pense que nous allons interrompre ici la séance de ce matin. Cependant, je voudrais attirer votre attention sur la nécessité de suivre, le plus près possible, le plan de discussion qui a été établi par Monsieur GODAR.

Nous avons fait ce matin, si j'ose m'exprimer ainsi, un galop d'essai, qui nous a montré que la discussion avait tendance à se disperser, puisque nous avons commencé par le point a) - ce qui serait normal s'il n'y avait pas, auparavant, un point 1 - et nous avons atteint très rapidement le point e), en " sautant " sur un très grand nombre de thèmes. Je pense que, si cet après-midi, le déjeuner n'entraîne pas chez les participants la réflexion concernant la préparation des ci- bles, nous recommencerons au point a), avec l'étude des facteurs influençant la durée d'utilisation et je vous demande de bien vouloir, dans la mesure du possible, en vous aidant éventuellement d'un crayon et d'un papier, noter vos questions pour les faire apparaître au moment opportun, sinon il sera extrêmement difficile de conduire cette discussion, d'une part, et, d'autre part, d'en tirer des éléments constructifs. Je vous remercie beaucoup de votre attention. Je remercie également les orateurs qui se sont maintenus dans les temps qui leur étaient impartis, je remercie également les traducteurs; et je vous donne rendez-vous cet après-midi à 14 h.

x

x

x

Dr. PETER

Ich möchte eigentlich hier einen indirekten Beitrag zu diesem Thema leisten u.zw. glaube ich, dass heute keine Targets zur Verfügung stehen, die überhaupt in der Lage sind, die angebotenen "BEAM CURVES" Beamströme oder Strahlenleistungen zu vertragen und das wäre mit eines der wichtigsten Anliegen dieser Konferenz, das bezieht sich sowohl auf Tritium-Targets als auch auf jedes andere Target, das vor allem monoenergetische Neutronen liefert. Prädestiniert zu diesem Thema einen Ueberblick zu geben, wäre eigentlich Herr Dr. Münzer oder Herr Dr. Fabian, die kürzlich ein rotierendes Target für Tritium entwickelt haben. Als zweites möchte ich eigentlich die Forderung, die Herr Dr. Broerse heute früh gestellt hat, beantworten, nämlich, nach einem Beschleuniger, der die entsprechenden Neutronenmengen mit niedriger Energie liefert, die er denkt für radiobiologische Untersuchungen nötig zu haben. Diese Maschine wurde im Laufe eines Vortrags heute morgen schon von Herrn Gerbier beschrieben. Sie ist ein Beschleuniger, der von Herrn Dr. Schmidt im Zentrum Karlsruhe gebaut wurde : 15 Amp. Pulsstrom 2×10^{-6} Sek. Pulsdauer und 150 Pulse pro Sekunde, das gibt einen mittleren Strom von 4,5 mA. Damit wäre ich am Ende.

Le Président - Monsieur WINAND

Je voudrais répondre au Dr. PETER que la 1ère partie de sa suggestion concernant la communication de MM. Fabian et Münzer aura lieu au point 4 C CIBLES ROTATIVES. Il est donc prévu d'y répondre tout à l'heure.

La 2e partie concerne la réponse à la question posée par Monsieur Broerse ce matin, d'obtenir des faisceaux d'intensité suffisante pour des applications radiobiologiques et le Docteur Peter rappelle l'existence de l'accélérateur de Karlsruhe qui, en fonctionnement pulsé, d'impulsions de 2μ sec. permet d'avoir des

faisceaux extrêmement intenses, l'intensité est de 4,5 mA de courant moyen. Quelqu'un désire-t-il prendre la parole ?

Monsieur MORGAN

I would like to suggest as far as the intensity of the beam current incident upon the target that one adopts the nomenclature of micro-amperes per square centimeter and measured with a Faraday cup suitably suppressed with approximately 300 volts negative.

LE PRESIDENT - Monsieur WINAND

La suggestion de Monsieur Morgan propose d'adopter pour la mesure d'intensité de courant de faisceau, l'expression de microampères par cm², mesuré au moyen d'une cage de Faraday, l'émission secondaire étant supprimée par une différence de potentiel négative de 300 volts. Si quelqu'un a une remarque à faire sur cette suggestion, nous pourrions alors l'adopter ou la modifier.

Monsieur SCHMIDT

Nicht bei jeder Anlage ist es möglich, einen Faradaykäfing einzusetzen. Das geht ohne weiteres bei einem konventionellen Beschleuniger mit einem langen Strahlweg. Bei abgeschlossenen Systemen ist das nicht so leicht möglich.

Deshalb schlage ich als Alternative für die Messung des Strahlstromes vor, auch eine kalorimetrische Messung zuzulassen, bei der die Belastung des Targets also aus dem Temperaturanstieg des Kühlmitteldurchflusses bestimmt wird.

Ich denke da besonders an die abgeschmolzenen Röhren, z.B. auch an die von uns in Karlsruhe entwickelte Neutronenblitzröhre, bei der es nicht möglich ist, einen Faradaykäfing

einzusetzen, weil die Beschleunigung über einen sehr kurzen Abstand erfolgt und das Target selbst als Beschleunigungselektrode wirkt.

Erlauben Sie mir bei dieser Gelegenheit, die Daten dieses Beschleunigers zu erläutern, der von Dr. Peter vorhin schon erwähnt wurde. Einzelheiten bitte ich dem Bericht des Kernforschungszentrums Karlsruhe KFK 304 zu entnehmen.

Dieser Neutronengenerator (Abb. 1°) wird als abgeschlossenes Niederdruck-Entladungssystem in zerlegbarer Metall-Keramik-Ausführung betrieben, gefüllt mit einer Mischung von Deuterium und Tritium zu gleichen Teilen. Der Druck von $\text{ca. } 2 \cdot 10^{-3}$ torr wird mit Hilfe eines speziellen regelbaren Speichers konstant gehalten.

Die Arbeitsweise sei an Hand der Abb. 2), die das Wesentliche zeigt, erläutert.

Ein von aussen durch die keramische Röhrenwandung induktiv eingekoppelter Hochfrequenz-Leistungsimpuls von 200 kW Spitzenleistung bei einer Frequenz von ca. 40 Mc/sec dauert 15 μsec und erzeugt in einer zylindrischen Entladungskammer aus Pyrex (Volumen ca. 1,3 Liter) ein intensives Hochfrequenz-Entladungsplasma.

Nach dem Aufbau dieses Plasmas in der angegebenen Impulsdauer des Hochfrequenzimpulses bekommt man in der kreisrunden Emissionsöffnung (10 cm^2) Ionenemissionsstromdichten von $1\text{-}2 \text{ A/cm}^2$, also einen Ionenemissionsstrom von ca. 15 A mit hohem Atomionenanteil (ca. 80-90%).

Die auf diese Weise erzeugten Deuterium- und Tritium-Ionen werden nach dem Verlassen des Plasmas von der Emissionsöffnung aus durch einen Hochspannungsimpuls von 150 kV und 2 μsec Dauer in Form einer divergenten kurzen (2,5 cm Beschleunigungsstrecke) Strömung positiver Raumladung direkt auf ein Tritium-Deuterium-Target (50 mm \varnothing) beschleunigt und erzeugen dort Neutronen.

Das Target besteht aus einer Titanschicht ($2,5 \text{ mg/in}^2$) auf einer 1,5mm Kupferunterlage und wird durch einen Wasserstrom an der Rückseite gekühlt.

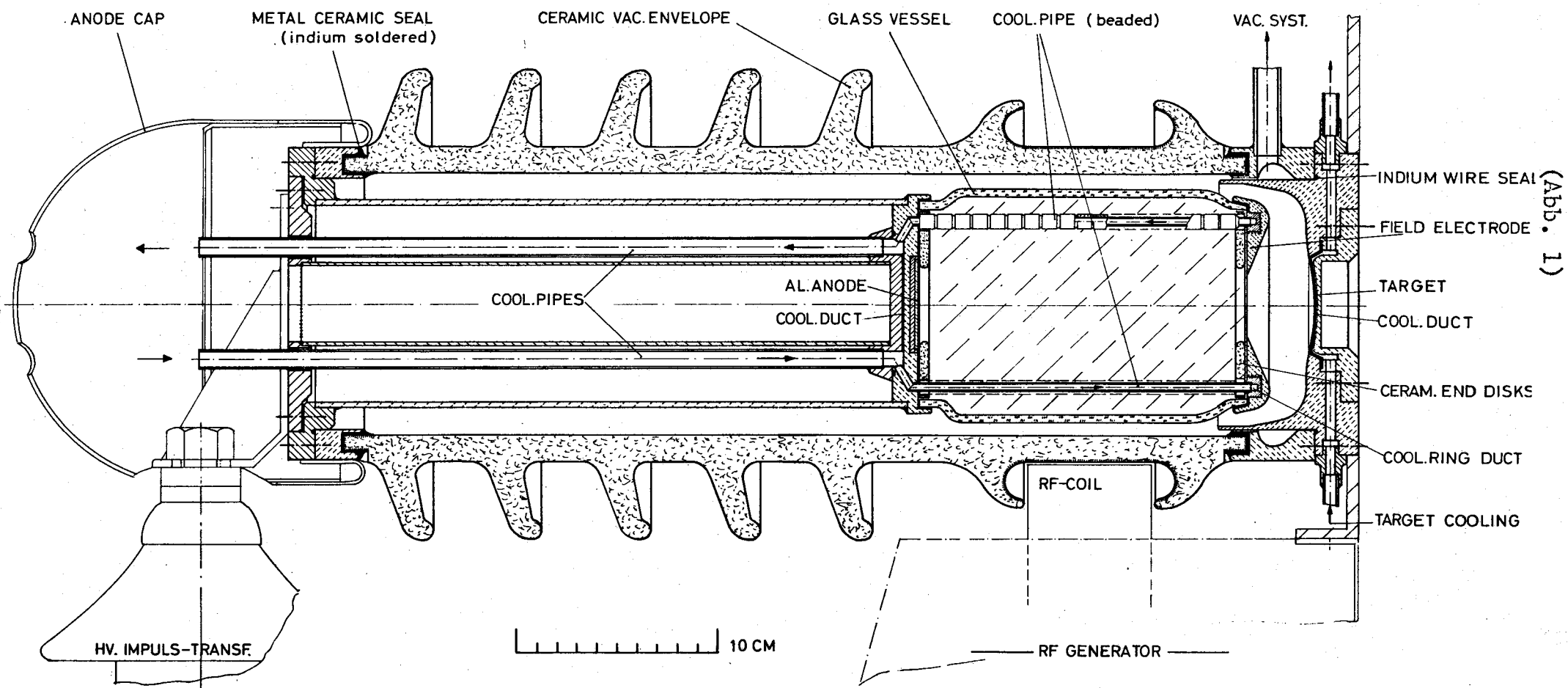
Beim Aufprall an der Oberfläche des Targets löst jedes Ion im Mittel ca. 4 Sekundärelektronen aus. Diese werden der divergenten Ionenströmung entgegen als konvergentes Bündel in Richtung auf die Ionenemissionsöffnung zu beschleunigt, durchsetzen dann das Hochfrequenzplasma nahezu ungehindert und treffen auf die jenseits der Entladungskammer befindliche wassergekühlte Anode. Diese Bündelung der Elektronen wird durch die schwache Krümmung der Targetoberfläche unterstützt, da die anfänglich langsamen Elektronen normal zu der Targetoberfläche beschleunigt werden.

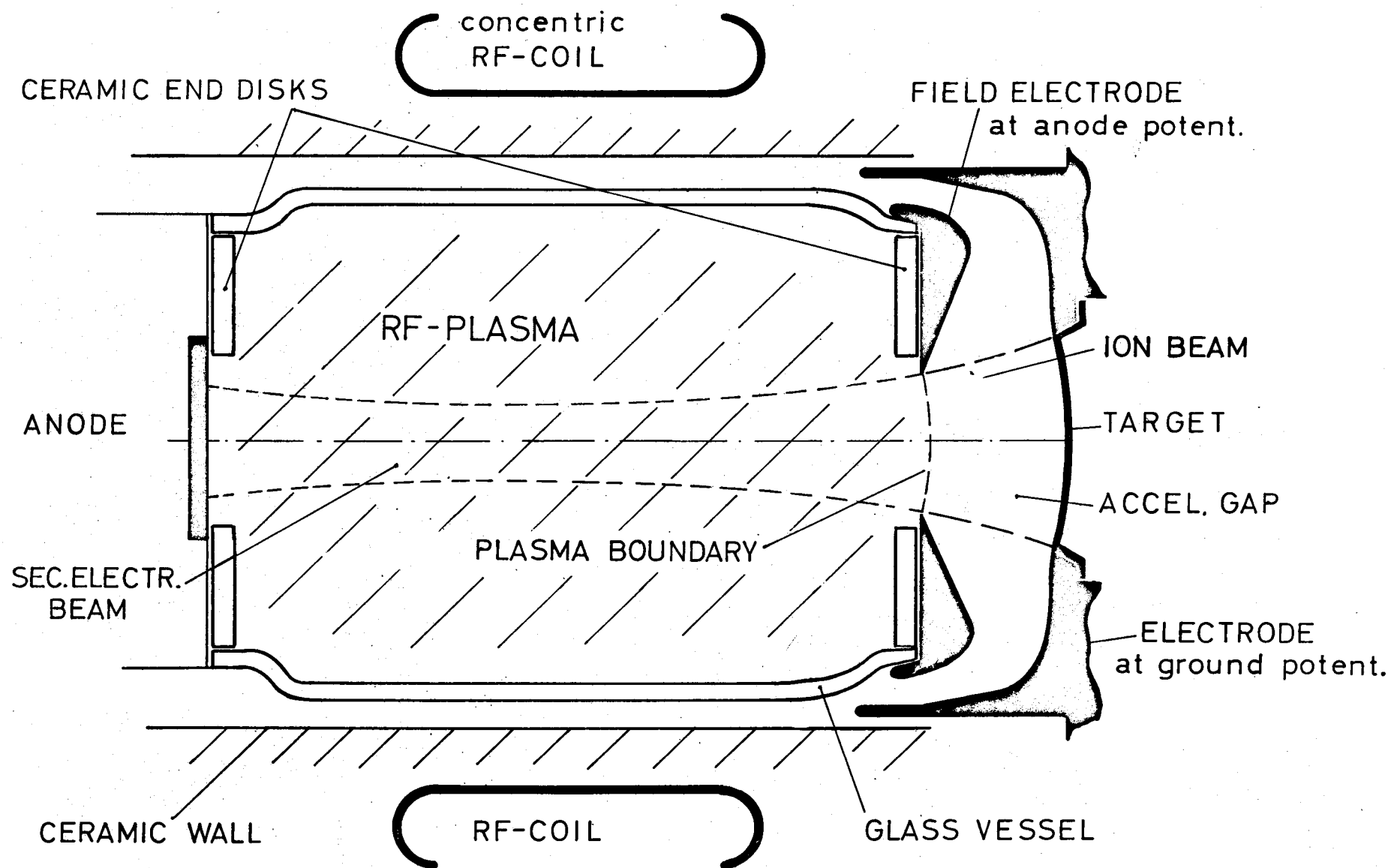
Infolge dieses Sekundärelektronenanteils entspricht einem Ionenstrom von 15 A ein Gesamtimpulsstrom von 75 A, der bei einer Spannung von 150 kV vom Impulstransformator geliefert wird.

Die Röhre erzeugt momentane Spitzenneutronenquellenstärken von $2,5 \cdot 10^{14} \text{ n/sec}$, während 2 μsec langer Impulse also $5 \cdot 10^8 \text{ n/puls}$.

Bei einer maximalen Impulsfolgefrequenz von 250 p/sec erhält man eine mittlere Quellstärke von mehr als 10^{11} n/sec .

Die anfängliche Neutronenausbeute nach Einsatz eines voll beladenen Tritium-Targets und nach dem Einfüllen einer gleichen Menge Deuteriumgases in das Reservoir des Gasdruckreglers mit Hilfe eines Ni-Ventils ist ungefähr dreimal so hoch wie die oben angegebenen Ausbeutewerte. Diese beziehen sich auf die nach ca. 2 h Betrieb erreichte Gleichgewichtsverteilung von Tritium und Deuterium. Danach bleibt die Neutronenausbeute während der Lebensdauer des Targets konstant. Die Targetlebensdauer ist durch die Zerstäubung des Targets bestimmt und hängt daher sehr von der Reinheit des Entladungsgases





(Abb. 2)

ab. Durch das verwendete Druckregelsystem wird das Entladungsgas während des Betriebes ständig von anderen Gasen gereinigt. Nach ca. 100 h Betriebsdauer der Anlage bei einer Impulsfrequenz von 150 p/sec wurde noch kein Abfall der Neutronenausbeute registriert.

Das Auswechseln eines verbrauchten Targets kann in der Zeit von 1/2 h durchgeführt werden. Nach weiteren 2 h ist die Röhre erneut betriebsbereit.

Da das Target auf Erdpotential betrieben wird und gut zugänglich ist, können kleine Proben (bis 40 mm ϕ) in ca. 5mm Abstand von der Targetfläche (50 mm ϕ) bestrahlt werden. Grössere Strukturen kann man bis auf 25 mm an das Target heranbringen, so dass dabei nahezu der Raumwinkel 2π der Neutronenquellstärke ausgenutzt werden kann.

Zwischen den Impulsen werden keine Neutronen erzeugt, da zu diesen Zeiten keine Beschleunigungsspannung an der Röhre liegt.

Monsieur WINAND - PRESIDENT

Je reviens maintenant sur la 1ère partie de cette question : le remplacement des mesures électriques par des mesures thermiques.

Quelqu'un demande-t-il la parole à ce sujet ?

Monsieur LOMER

We have used the calorimetric method of measuring currents quite extensively and found it a very successful method. Certainly in sealed off tubes, I don't think any other electrical method using a Faraday cage would be practical.

Monsieur REIFENSCHWEILER

Ich wollte zu den Ausführungen von Herrn Schmidt und Herrn Lomer hinzufügen, dass wir ebenfalls sehr viele Messungen des Ionenstroms mit Hilfe von Kalorimetrie durchgeführt haben. Es ist tatsächlich in abgeschmolzenen Neutronenröhren sehr oft unmöglich, eine direkte Messung des Stromes mit Unterdrückung von Sekundärelektronen durch eine negative Gegenspannung durchzuführen. Vor allen Dingen ist dies dann der Fall, wenn der Gasdruck in der Röhre relativ hoch ist, z.B. in der Grössenordnung von 10^{-2} mm Hg. Man bekommt nämlich dann durch den primären Ionenstrahl eine starke Ionisation des Gases in der Gegend des Targets. Beim Anlegen der Spannung zwischen dem Target und der die Sekundärelektronen zurückstossenden Elektrode bekommt man wie in einer Ionisationskammer einen Strom zwischen diesen Elektroden, der unter Umständen höher ist als der Targetstrom selbst. Da dieser Strom dem primären Ionenstrom entgegengesetzt ist (das Target nimmt die bei dem beschriebenen Ionisationsprozess gebildeten negativen Ladungsträger auf), wird der Targetstrom manchmal sogar negativ.

Unsere Erfahrungen zeigten, dass unter diesen Umständen die gewiss einfachere elektrische Messung des Ionenstroms nicht möglich ist, während die kalorimetrische Messung eindeutige Resultate liefert (Siehe z.B. Nucleonics 18 Nr. 12, 69 - 71, 1960 und Nucl.Instr.Methods 30, 298 - 302, 1964.

Monsieur MORGAN

In cases where the target is maintained at high potential, certainly it is necessary to use a calorimetric method for beam current measurements therefore it might be suggested that the calorimetric technique be used for sealed tubes but the prior proposed technique be used on beams where suppression is available.

Monsieur WINAND - PRESIDENT

Donc, dans les tubes où une suppression des émissions secondaires est réalisée, on utilisera une cage de Faraday et dans les tubes scellés, on la remplacera par la mesure calorimétrique sur la cible.

CONVENTION GRENOBLE 1965

A la suite des discussions relatives à la spécification des conditions dans lesquelles les cibles ont été éprouvées, il est convenu que la densité de courant de faisceau sera exprimée en microampère par centimètre carré de cible. Le courant sera mesuré au moyen d'une cage de Faraday, les électrons secondaires étant repoussés par un supprimeur porté au potentiel négatif de 300 volts par rapport à la cible.

Pour les tubes scellés, pour lesquels ce dispositif n'est pas réalisable, la mesure en question sera remplacée par la mesure calorimétrique.

Monsieur WINAND - PRESIDENT

Passons au point I2 A 2 : l'influence de l'énergie de la particule.

Monsieur HOSTE

Monsieur le Président, si vous le permettez j'aimerais revenir sur le point I2 A 1 : INTENSITE DU COURANT DE FAISCEAU. D'après notre expérience, qui est très limitée puisque nous ne disposons d'un générateur que depuis 6 mois, s'il est important de pouvoir mesurer l'intensité du faisceau, je crois qu'il est tout aussi important de contrôler et de pouvoir mesurer l'homogénéité du faisceau, c'est à dire la repartition. L'homogénéité du faisceau, non pas quant à sa composition, mettons ions atomiques ou moléculaires, mais vraiment de voir si le nombre de particules par unité de surface de la cible est réparti de manière homogène.

Monsieur WINAND - PRESIDENT

Avant de répondre à Monsieur HOSTE, je voudrais consulter l'ordre du jour. J'ai pensé que ce problème pourrait être évoqué ultérieurement. Il ne semble pas qu'il y soit mentionné, nous pourrions l'intercaler ici, si vous le voulez. Je crois que c'est un point extrêmement important et que nous pourrions consacrer à l'examen de cette question une certaine partie de la séance. Donc, PROBLEME DE L'HOMOGENITE DU FAISCEAU, non pas au sens qui a été évoqué ce matin, de la composition en ions atomiques ou en ions moléculaires, mais de la répartition de l'intensité des particules dans le faisceau. Il s'agit de savoir si la répartition est gaussienne,

si elle est rectangulaire ou quelle est son homogénéité. Quelqu'un voudrait il nous parler des solutions qu'il aurait apportées à ce genre de problèmes. M.GERBIER

Monsieur GERBIER

A Grenoble, nous avons mis au point une sonde tournante dont voici la description :

La sonde de faisceau consiste essentiellement en une tige de tungstène (diamètre environ 1 mm) qui tourne autour d'un axe perpendiculaire au faisceau tout en restant parallèle à elle-même (diamètre de rotation 40 à 50 mm).

L'entraînement de la sonde se fait par un petit moteur synchrone (50 périodes) dont le rotor est sous vide et le stator à l'extérieur. Une chemise très mince en laiton placée entre rotor et stator assure l'étanchéité au vide sans nuire au fonctionnement du moteur.

Les risques de grippage par échauffement ont été éliminés par l'emploi de microroulements à bille, de graisses spéciales, et l'adjonction d'un radiateur en cuivre servant de volant thermique.

Un enroulement auxiliaire maintient la sonde hors faisceau à l'arrêt (frein magnétique).

Le signal électrique recueilli par la sonde, lorsqu'elle est frappée par le faisceau, est transmis en bout d'arbre, par une butée frottante connectée sur câble coaxial, à un oscilloscope BF.

L'emploi de deux sondes (à axes de rotation perpendiculaires entre eux) et d'un oscilloscope à double trace, permet de connaître la position de l'axe du faisceau par rapport à l'axe idéal, et ses dimensions transverses dans deux plans méridiens orthogonaux.

Ce système a un défaut, il n'est probablement pas quantitatif, car il est fondé sur le fait que la sonde de tungstène passant dans le faisceau reçoit un courant que l'on mesure, et ce courant devrait être le courant d'ions. Pour les forts faisceaux, la sonde s'échauffe très vite et, très probablement il y a réémission d'électrons secondaires. Donc on a, par ce moyen, une idée qualitative sur la largeur du faisceau, et sur la présence ou l'absence de ce que nous appelons des points chauds dans le faisceau. Mais on ne peut pas à proprement parler faire une mesure soit de diamètre de faisceau, soit de répartition de courant. D'après notre propre expérience, ces mesures qualitatives sont largement satisfaisantes et, je pense, suffisantes, car depuis que nous utilisons cet appareillage, le comportement de la cible est beaucoup plus régulier. Il ne se manifeste pas sur les cibles, après démontage, des traces de brûlures localisées comme cela arrivait avant que nous n'ayons les moyens pour mesurer cette homogénéité.

Monsieur REIFENSCHWEILER

Wir haben in Eindhoven mehrere Methoden zur Bestimmung der Verteilung des Ionenstromes an der Targetoberfläche ausgearbeitet.

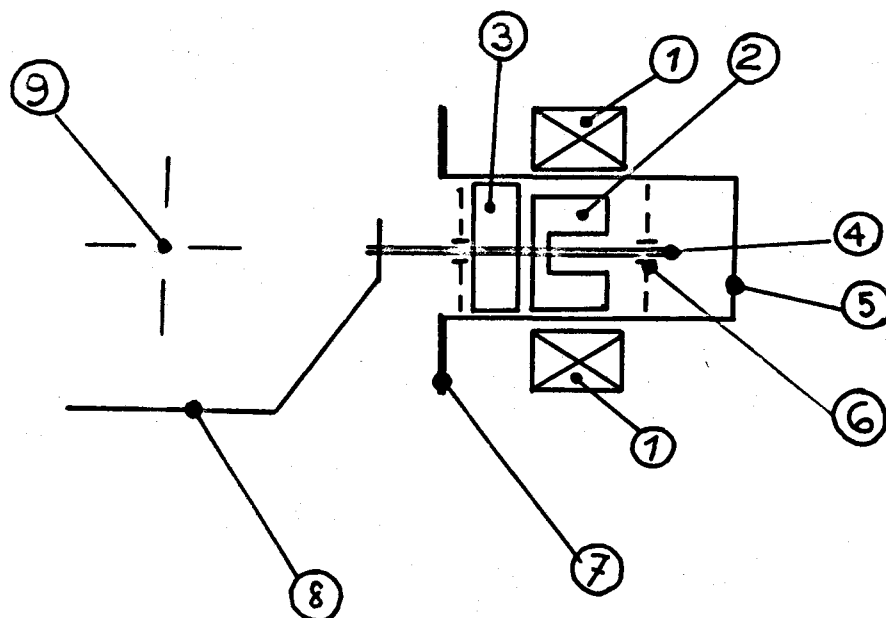
Bei einem dafür günstigen Wert des Gasdruckes im Beschleunigungsraum (etwa von einigen 10^{-5} bis zu einigen 10^{-3} mm Hg) kann man einen Eindruck über die Breite des Ionenbündels durch visuelle Beobachtung bzw. durch eine photographische Aufnahme des Ionenbündels bekommen. ⁽¹⁾

Über eine erste exakte Methode zur Bestimmung der Ionenstromverteilung in der Targetfläche wurde auf der Gasentladungskonferenz in Uppsala 1959 berichtet ⁽²⁾. Sie besteht darin, dass eine Blende mit einer Öffnung von 0,1 mm Durchmesser durch den Ionenstrahl bewegt, und dass der durch die

Schéma de principe de sonde de faisceau

C.E.A.
C.E.N.G.

Section des
Accélérateurs



- 1 - Stator
- 2 - Rotor
- 3 - Radiateur
- 4 - Axe moteur
- 5 - Chemise étanche au vide
- 6 - Roulements à bille
- 7 - Raccordement sur tube prolongateur
- 8 - Sonde Tungstène
- 9 - Axe du faisceau d'accélérateur (idéel)

SCHEMA DE PRINCIPE
DE SONDE DE FAISCEAU

Blende hindurchtretende Ionenstrom als Funktion des Ortes gemessen wird. Eine massenspektrometrische Analyse des durch die Blende hindurchtretenden Ionenstromes erlaubte zusätzlich eine Bestimmung der Verteilung der verschiedenen Ionensorten H_1^+ , H_2^+ und H_3^+ im Ionenbündel. Ueber dabei festgestellte Anomalitäten in der Verteilung der einzelnen Ionensorten und deren Deutung, die interessante Rückschlüsse auf den Mechanismus der Ionenextraktion aus dem Plasma von Gasentladungen zuließen, wurde ebenfalls in Uppsala berichtet. Zumeist war bei unseren Experimenten (Ionenextraktion aus einem Gasentladungsplasma) der Prozentsatz der H_1^+ -Ionen am Rande des Strahls und derjenige der H_3^+ -Ionen im Zentrum des Strahls erhöht.

Eine zweite, im Prinzip einfache Methode ist allerdings nur anwendbar, wenn im Ionenstrahl Tritium (bezw. Ionen eines anderen Radioisotops) enthalten sind, wie dies z.B. bei den mit DT-Mischung arbeitenden abgeschmolzenen Neutronenröhren der Fall ist. Bei dieser Methode wird als Target ein Stoff mit einer verschwindend kleinen Wasserstoffdiffusion verwendet. Wir haben zu diesem Zweck Gold benutzt. Man bringt dazu eine Goldplatte an die Stelle des Targets und lässt den Beschleuniger einige Zeit arbeiten, wobei die Ionen des Strahls, also auch des Tritiums, in die Goldplatte eingetrieben werden^(1,3). Man muss bei diesem Experiment vor allem darauf achten, dass an keiner Stelle des Targets die Sättigungskonzentration des Wasserstoffisotops in Metall angenähert wird, vielmehr muss an jeder Stelle des Targets der Tritiumgehalt noch gut proportional der Bestrahlungszeit sein. Die Verteilung der Tritiumkonzentration gibt nach dem Experiment die Verteilung des Ionenstroms am Target wieder. Diese kann sehr einfach durch eine Messung der mittels der β -Emission des Tritiums zusammenhängenden örtlichen Röntgenstrahlung (innere und äussere Bremsstrahlung sowie charakteristische Röntgenstrahlung des Targetmaterials) über die Target-

oberfläche bestimmt werden. Hierzu bringt man eine Blende mit einer kleinen Oeffnung (z.B. 0,5 oder 1 mm Durchmesser) auf die Platte und misst die Intensität der Röntgenstrahlung hinter dieser Oeffnung, z.B. mit einer Fenster - GM - Röhre^(1,4).

Eine dritte, experimentell sehr einfache Methode ist dann anwendbar, wenn sich das Target dicht an der Oberfläche befindet und wenn es Neutronen produziert. Man misst, ähnlich wie oben beschrieben, jedoch nun besser über eine korpuskulare Strahlung (β^- oder β^+) die Verteilung der von den Neutronen induzierten Radioaktivität entweder über die äussere Oberfläche des Targets selbst oder über die Oberfläche einer während des Experiments aufgelegten Platte geeigneten Materials, nachdem der Beschleuniger einige Zeit in Betrieb war. Wir haben zu diesem Zwecke bis jetzt Silber und Kupferplatten angewendet.

Eine weitere Methode, die wir bis jetzt allerdings experimentell noch nicht erprobt haben, besteht im Hindurchführen eines Mikrokalorimeters durch den Ionenstrahl.

- (1) Z.B. Phipps Res.Repts. 16 406/407, 1961.
- (2) Proc.Conf.Ionis. Phen.in Gases, Uppsala, 1959 II E 541 - 548
- (3) Siehe hierzu auch K.Fiebiger, Z.angew.Physik 9, 213-223 1957 und D.P. Smith, Hydrogen in metals, Univ. of Chicago Press, Chicago 1948.
- (4) Proc.Meeting Liège, Febr.17-18, 1964, EUR 1815, e,S.26.

Monsieur FABIAN

Ich möchte im Zusammenhang mit dem Strahldurchmesser noch etwas vorschlagen.

Es wäre günstig, wenn in der Literatur keine Angaben über die Qualität der Targets in mAh, sondern in mAh/cm² gemacht würden. Es ist ja nicht egal, ob der Ionenstrahl mit derselben Ladung auf einige mm² oder einige cm² trifft. Durch die Angabe in mAh ergibt sich die Diskrepanz in der Definition von Targetqualitäten.- Danke schön.

Monsieur WINAND - PRESIDENT

Nous reviendrons sur ce point tout à l'heure, de toute façon je voudrais dire à M. FABIAN que la suggestion qui a été faite tout à l'heure visait précisément à tenir compte de la répartition du faisceau sur la surface de la cible et à éviter cette confusion à laquelle il vient de faire allusion.

Il n'y a plus de demande d'intervention pour ce point relatif à l'énergie de la particule incidente ?

L'influence du diamètre du faisceau : point I2 A3

Monsieur MELIA

As a representative of HVEC, an accelerator manufacturer, I am interested in determining if researchers in the field of activation analysis have any specific requirements in regard to the energy of the incident particle energy. In other words, what degree of voltage instability can be tolerated by the experimentalist ?

Monsieur WINAND - PRESIDENT

La question posée par Monsieur MELIA est de savoir quelles sont les exigences posées par les utilisateurs sur la stabilité en énergie des particules du faisceau. Je crois que c'est un point auquel il sera assez difficile de répondre étant donné que les utilisateurs sont très nombreux et leurs exigences à cet égard très différentes.

Monsieur PAULI

En ce qui concerne les applications de l'analyse par activation, je crois qu'il n'y a pas d'exigence très grande à ce point de vue au moins pour les accélérateurs qui utilisent un faisceau de deutons d'énergie faible et la réaction sur le

tritium. Alors une petite variation de l'énergie des deutons n'a aucune influence pratique sur l'énergie des neutrons.

Monsieur MORGAN

I think the best way to measure the beam energy would certainly be with magnetic analysis. I will agree with the representative from High Voltage, in the case neutron production from thick targets a few percent variation in the energy of the beam is certainly not important.

Monsieur HUNT

I agree with the previous speakers that, if one is thinking of the D T reaction only, clearly energy stability of the beam is not very important since this reaction has a broad resonance. However if one is considering the application of higher energy machines to neutron production using endothermic reactions such as the lithium (p,n) reaction the energy stability of the machine could be quite important, particularly if working just above the threshold energy of the reaction.

Monsieur WINAND - PRESIDENT

Cette remarque est tout à fait pertinente pour les réactions à seuil en effet.

Monsieur GUILLAUME

Je suis un utilisateur de VAN DE GRAAFF et je voudrais poser une question à Monsieur MELIA. L'existence de " points chauds " intéresse vivement les utilisateurs puisqu'ils constituent un facteur critique dont dépend le temps de vie des cibles. La sonde d'homogénéité de faisceau dont on a parlé, est exclusivement un dispositif de détection. Quand précisément, on

détecte une hétérogénéité du faisceau, quels moyens peut-on utiliser pour corriger ce défaut ?

Monsieur MELIA

Using a beam profile monitor system we have determined that the diameter of an accelerated proton beam is gaussian in shape. A magnetic quadruple lens can be used to defocus the beam and increase beam diameter at target plane. If one is particularly interested in a uniform distribution of the accelerated beam over a specific target area, one can locate beam defining apertures in the beam tube extension to remove the unwanted beam. Of course one does reduce particle intensity on the target by following this approach.

Monsieur BROERSE

When targets with a larger surface area are employed, it is self-evident that an increase in target half-life, expressed in milliamperere hours, will be found. I think we have to focus our activities on the improvement of the target quality in order to obtain better half-lives per cm^2 of the target area.

Monsieur MORGAN

If one happens to be plagued with a machine whose beam optics are such that there are hot spots it would probably be best to focus the beam to a very small spot for high flux experiments and then use a beam sweeping device to disperse this fine spot over the total surface of the target for a low uniform flux.

Monsieur WINAND - PRESIDENT

Quelqu'un dans l'assemblée a-t-il actuellement réalisé ou vu réaliser un balayage de la surface de la cible par manipulation du faisceau ?

Monsieur MELIA

High Voltage Engineering Corporation manufactures an electrostatic scanning system. This system is similar in design to a television raster. That is, by placing a high frequency scan on one set of plates and a low frequency scan on another set of plates, a rapidly alternating lateral and vertical deflection of the accelerated beam about the undeflected position is proved. HVEC has supplied such a system for a specific aerospace application where the customer desires to irradiate complete electronic packages with proton, electrons, and dust particles. The total scan area is 24 x 24 inches with a beam uniformity of $\pm 10\%$ over the whole area.

Monsieur PETER

But I believe the question of Mister MORGAN was to get in a high flux target and this principle has been also solved with an electrostatic deflection device which is used in Aachen since two or three years already and which successfully allows operation of a three million volt-four hundred microampere beam on one centimeter diameter of a beryllium target.

Monsieur WINAND - PRESIDENT

Nous passons au point I2 A4 TEMPERATURE DE LA CIBLE-
Le point a) problème de refroidissement.

Monsieur GUILLAUME

Je voudrais poser une question à Monsieur BROERSE qui a parlé ce matin de la mesure des températures des cibles. Il est évident que la connaissance de la température d'une cible est un point essentiel, que l'on utilise des cibles de nature métallique ou que l'on utilise d'autres cibles. Mr. BROERSE a donné une description que je n'ai pas tout à fait comprise et

au sujet de laquelle je souhaiterais qu'il nous donne plus de détails surtout sur la mesure de la température de la face arrière de la cible. Je me suis intéressé précisément à ces questions et je serais heureux de pouvoir comparer nos résultats. D'autre part, je voudrais, en plus, lui demander s'il n'a jamais tenté de faire des mesures de température de la face avant ? ce qui représente une difficulté qui, bien que difficile, ne semble pas toutefois insurmontable.

Monsieur BROERSE

We used the experimental arrangement proposed originally by Rethmeier and Van der Meulen (see reference 8 of my paper). A copper rod is heated by an electrical element. A copper disc of equal dimensions as the target used, is soldered to the end of the rod. This copper disc could be fixed in the different target holders to be tested. A thermal insulation of asbestos was wound around the electrical element in order to reduce the heat transfer. The temperatures at different positions along the rod were measured with thermocouples. As can be seen from the figure 3, which I presented, the relative target temperature was about 15°C with the former target holder and about 100°C with the improved target holder at the water flow velocities employed. It should be realized that these temperatures are not equal to the actual temperatures in the targets during deuteron bombardment. The temperatures given in figure 3 are measured with the thermal analogon.

Monsieur GUILLAUME

Pour quelle raison ne mesurez-vous pas directement la température de la face arrière de la cible étant donné, je pense, que vous y avez accès ? Je crois que cette mesure serait une mesure absolue alors que ceci ne vous donne qu'une indication relative ?

Monsieur BROERSE

The experimental arrangement which I described, was only used with a view to be able to make a rapid comparison between the cooling capacities of different target holders. Absolute measurements of the target temperature during operation were not carried out.

Monsieur CHRISTALLER

Wir haben an unserem Isochronen-Cyclotron an verschiedenen Metalltargets versucht, durch aufgedampfte Halbleiter-Thermoelemente auf der Frontseite die Temperatur zu messen. Diese Versuche stecken noch etwas im Anfang. Sie zeigen aber etwa folgendes : Unmittelbar im Strahlengang kann man diese Halbleiter-Thermoelemente kaum montieren, weil die grossen abgegebenen Ladungen zur völligen Verfälschung der Ergebnisse führen. Jedoch kann man in unmittelbarer Nähe, wenn man einen einigermaßen gut fokussierten Strahl hat, sehr gut die Temperatur wenigstens auf Metalltargets unmittelbar auf der Oberfläche messen. Wir haben ebenso auf der Rückseite von neutronenproduzierenden Targets, wie etwa Beryllium oder auch Kohlenstofftargets, die Temperatur gemessen mit solchen aufgedampften Halbleiter-Thermoelementen, und zwar die Temperatur, die die mit Neutronen zu bestrahlende Materie hat.

Monsieur GRAY

Since the surface temperature of the target during neutron production is the most interesting measurement, I would like to know if any of the neutron generator producers who are represented here have measured the surface temperature by infrared pyrometry. Much of this work is done in demountable tubes where optical access should be possible. Perhaps this is a method which might be tried.

Madame BREYNAE

Nous avons effectivement essayé cette méthode.
Voici nos résultats :

Nos cibles tritiées ou deutérées placées sur accélérateurs sont généralement refroidies annulairement par circulation d'eau. Leur face arrière étant accessible, nous avons pu mesurer par thermocouple la température atteinte par la cible au cours d'un bombardement de deutons. Dans les mêmes conditions d'épaisseur et de refroidissement de la cible, de puissance et d'homogénéité du faisceau, nous avons retrouvé des températures équivalentes.

Connaissant la température de la face arrière de la cible dans ces conditions, nous avons essayé de mesurer la température de la face avant de nos cibles dans d'autres conditions de refroidissement. Nous avons essayé d'utiliser une caméra infra-rouge. L'émission infra-rouge d'une cible chauffée dépendant de la nature de la cible et de son état de surface, nous avons étalonné notre caméra pour différentes cibles chauffées dans un four. Pour des raisons de protection biologiques, nous ne pouvions placer la caméra infra-rouge sur un accélérateur, aussi, nous avons simulé l'apport d'énergie du faisceau de deutons par un faisceau d'électrons de même puissance. Après avoir vérifié que pour les mêmes puissances en deutons ou en électrons, nous obtenions les mêmes températures pour les cibles refroidies annulairement, nous avons mesuré simultanément les températures face arrière par thermo-couple, face avant par rayonnement infra-rouge d'une cible bombardée par un faisceau d'électrons. Sur des cibles mince de 5/10 mm d'épaisseur, les résultats sont semblables, compte tenu du peu de précision de la méthode infra-rouge.

Monsieur CHRISTALLER

Ich glaube die Methode, die Infrarotstrahlung zu messen, ist nur dort vernünftig, wo der Temperaturgradient

längs der Targets nicht so gross ist. Sonst lassen sich dort keine Temperaturdifferenzen nach dieser Methode erfassen. Das heisst also, für dicke Targets ist diese Methode kaum sinnvoll.

Monsieur GUILLAUME

Je tiens à confirmer les résultats obtenus par Mme. BREYNAT sur le gradient de température qu'elle a mesuré entre face avant et face arrière. J'ai réalisé de nombreux essais en utilisant deux dispositifs de refroidissement de cibles. Un dispositif par refroidissement global arrière et un dispositif à refroidissement annulaire. Dans chacun des cas, les gradients que j'ai pu mettre en évidence entre face avant et face arrière sur le Van de Graaff en fonctionnement ne dépassaient pas 10 à 15° C. Je tiens naturellement à préciser que les mesures que je réalisais étaient obtenues grâce à l'apposition d'un thermocouple mobile, après la coupure du faisceau. Ce dispositif, ayant été une fois pour toutes étalonné, nous renseignait les températures absolues qui apparaissaient sur l'avant de la cible. Les cibles utilisées étaient des cibles non chargées en tritium, parce que ces mesures étaient manuelles et m'obligeaient à me placer à proximité de la cible.

Monsieur WINAND - PRESIDENT

Quelle épaisseur ?

Monsieur GUILLAUME

5 mgr. par cm² de titane.

Monsieur WINAND - PRESIDENT

J'ai été très attentif à la suggestion qui a été faite des mesures de la température par infra-rouge, parce que nous

avons eu dernièrement à l'Université des démonstrations extrêmement intéressantes d'appareils de mesure de cette sorte. Il y a cependant je crois tout de même une difficulté, c'est que la température qui sera relevée sans contact, à distance, par ce dispositif à infra-rouge, dépendra du pouvoir émissif de la surface et que par conséquent, il serait absolument nécessaire de faire par ailleurs une normalisation des mesures par des moyens extérieurs, par exemple des bains thermostatiques ou autre. On ne peut pas transposer une mesure de température, je crois, directement à une surface différente.

Monsieur MORGAN

I would like to point out that according to the Handbook of Chemistry and Physics the metal hydrides are notoriously poor thermal conductors one should be very careful, about assuming a front surface temperature from back surface measurements.

Monsieur WINAND - PRESIDENT

Aucune autre intervention à ce sujet ? Passons donc au point I2 A4 b:

CIBLE PLACÉE OBLIQUEMENT PAR RAPPORT AU FAISCEAU. Influence de la position de la cible dans le faisceau, pour les cibles fixes bien entendu. Il semble que personne n'a de lumière particulière sur ce point ?

Alors nous allons aborder le point I2 A4 C :

Monsieur MORGAN

I should like to point out some measurements which we have had in previous years where the surface of the target was designed so that each small portion presented an oblique surface

to the beam. In fig. 1 the target assembly increased the surface area of the target by placing it obliquely to the beam. In doing this and trying to increase target lifetimes we constructed a target about two years ago, which is shown in fig. 2. The targets were machined out of copper, titanium was evaporated on the slanted surfaces. It was found that the half life of the target approximately followed the surface area presented.

Monsieur WINAND - PRESIDENT

Merci, Monsieur MORGAN pour ce détail de construction, pas d'autre intervention ? Monsieur LAVERLOCHERE -

Monsieur LAVERLOCHERE

Est-ce que le prix de telles cibles était beaucoup plus élevé que le prix des cibles normales ?

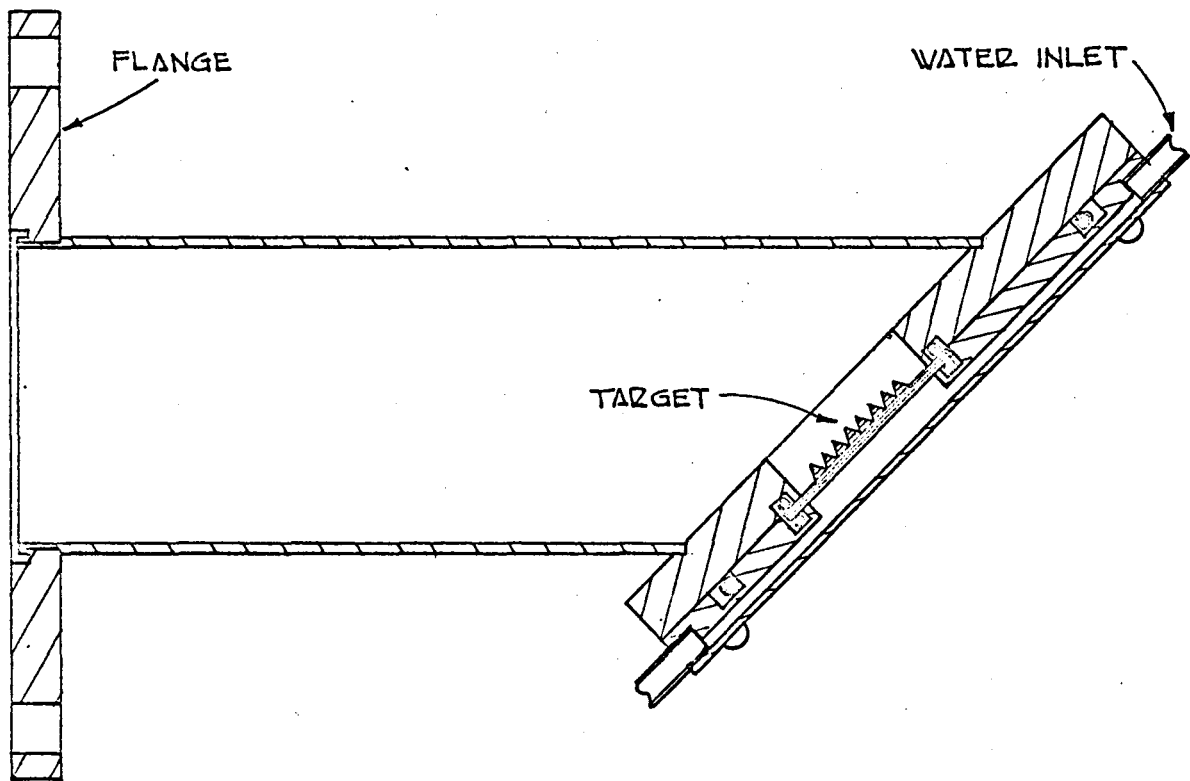
Monsieur MORGAN

The increase in cost for machining all the small grooves and for the titanium which was evaporated, I believe that the price would be a factor of ten greater than a normal target.

Monsieur WINAND - PRESIDENT

Point I2 A4 c) CIBLES ROTATIVES - je propose que nous entendions d'abord la communication de MM. FABIAN & MUNZER sur les cibles tournantes.

Figure I



BREAK ALL SHARP EDGES

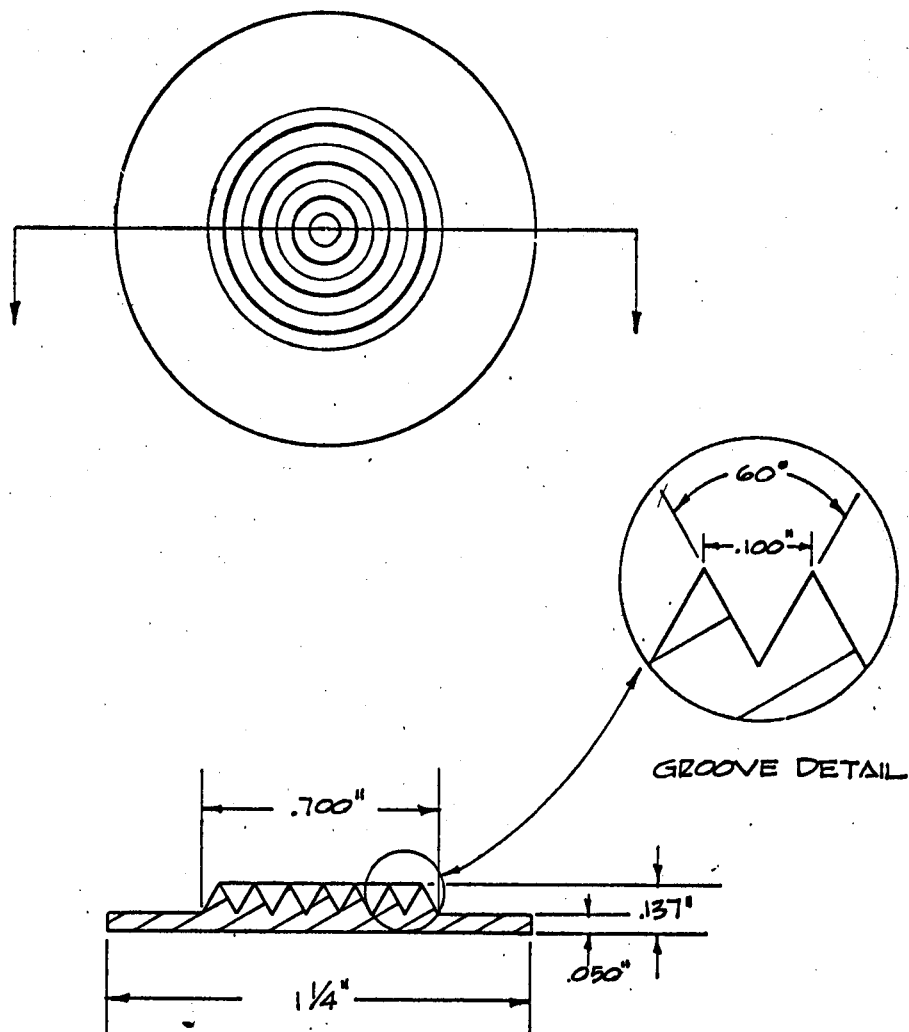
UNLESS OTHERWISE SPECIFIED DIMENSIONS ARE										
+	DECIMAL	+	FRACTIONAL	+	ANGULAR			R5		
-		-		-				R4		
MATERIAL								R3		
								R2		
FINISH						ASSY USED ON		R		
SCALE	DRAWN BY	DATE	CHK'D BY	DATE	APP'D BY	AT	WAS	DATE	DRAWN BY	APP'D BY
UFULL	CSM	10/5/65								
REVISIONS										

CONCO INDUSTRIES CORPORATION
Succors of Nuclear Chicago Corporation
311 Howard Avenue, Oak Park, Illinois, U.S.A.

SPECIAL TARGET ASSEMBLY


FIG. 1

Figure 2



BREAK ALL SHARP EDGES

UNLESS OTHERWISE SPECIFIED DIMENSIONS ARE			3 REQ'D.						
DECIMAL	FRACTIONAL	ANGULAR							
+ .003"	+ 1/64"	+			R5				
- .003"	- 1/64"	-			R4				
MATERIAL COPPER					R3				
					R2				
FINISH			ASSY USED ON		R				
SCALE 2X	DRAWN BY CPM	DATE 10/5/65	CHEK'D BY	DATE	APP'D BY	AT	WAS	DATE	DRAWN BY APP'D BY
REVISIONS									


toxco nuclear
 CORPORATION
 Subsidiary of Nuclear Chicago Corporation
 All Hazard Areas: Dry Powder, Illinois, U.S.A.

SPECIAL TARGET BLANK

FIG. 2

Monsieur FABIAN

Bei der Produktion von 14 MeV Neutronen mit der $H^3(d,n)$ He^4 Reaktion stellt die kurze Lebensdauer, die daraus resultierende nicht konstante Neutronenausbeute und die geringe thermische Belastbarkeit des Targets für den Verbraucher ein bis zur Zeit nicht gelöstes Problem dar.

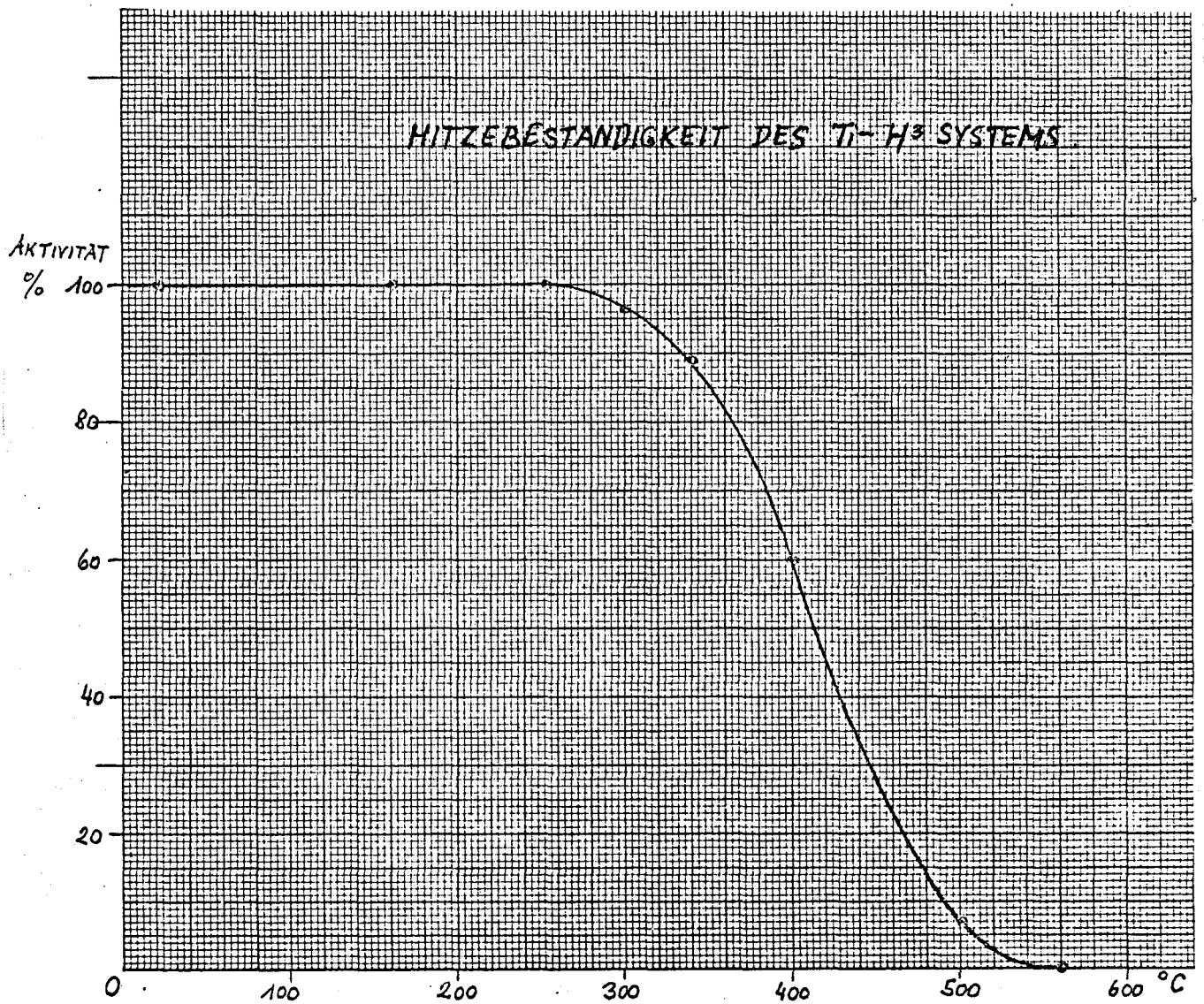
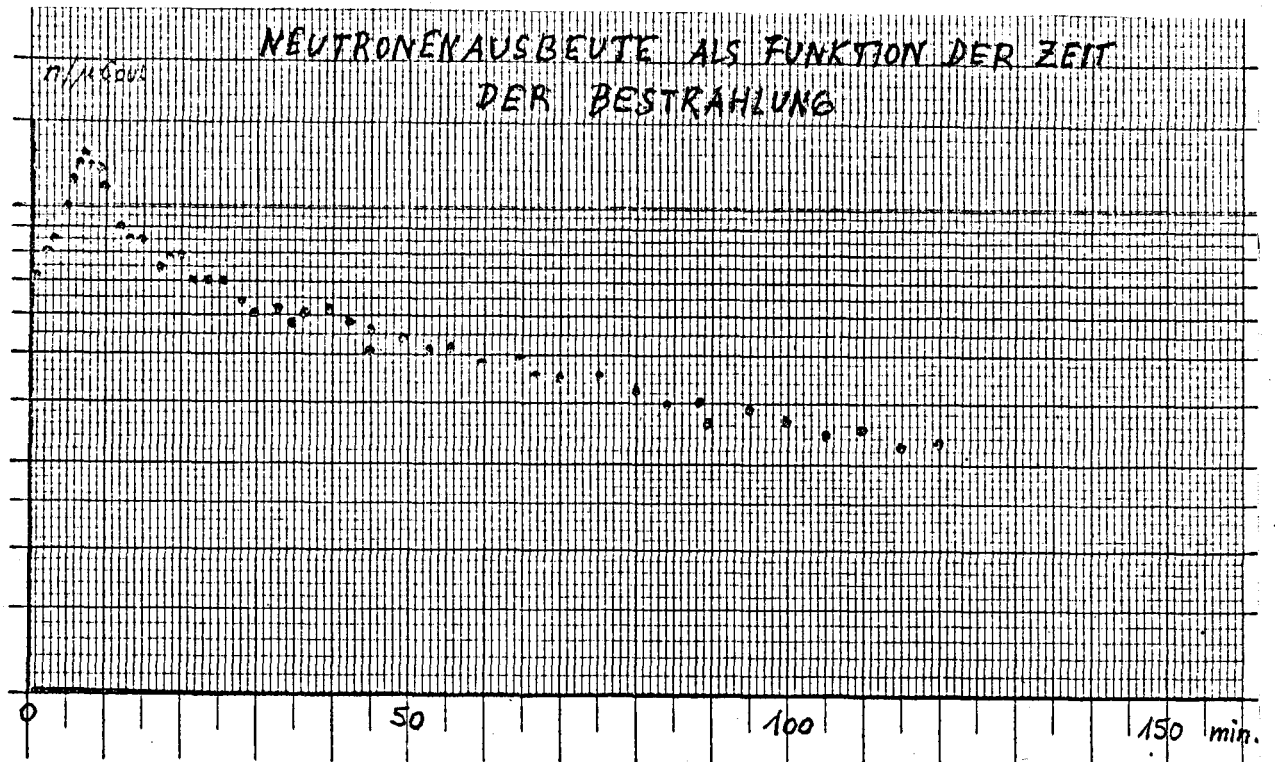
Ich möchte das Verhalten eines Targets bei Beschuss im Beschleuniger an Hand einer Darstellung zeigen. Abb.1 zeigt den Neutronenausbeuteverlauf eines Targets bei 200 μ A und 200 keV Belastung auf einer Fläche von 4 mm mittleren Durchmessers. Nach 40 min. ist die Ausbeute auf die Hälfte des Anfangwertes abgesunken. Man ist je nach Experiment nach 1 - 1,5 Stunden gezwungen, das Target zu erneuern. Dies bedeutet, man muss die Bestrahlung unterbrechen, den Generator abschalten und öffnen und das neue Target anbringen.

Die kurze Lebensdauer des Targets begrenzt Langzeitbestrahlungen überhaupt.

Durch die kurze Lebensdauer des Targets ist auch die Inkonstanz der Neutronenausbeute bedingt. Man besitzt keine konstante Neutronenquelle, wie man im allgemeinen wünschen würde, sondern eine Quelle, deren Intensität mit fortschreitender Zeit geringer wird.

Die thermische Beständigkeit des Titan-Wasserstoff-Systems ist begrenzt. Abb.2. Das Target darf maximal bis 250 °C erhitzt werden, ohne nennenswerte Mengen von Tritium zu verlieren. Während des Betriebes muss daher für eine entsprechende Kühlung des Brennflecks gesorgt werden. Diese Forderung ist bei höheren Targetbelastungen nicht immer einfach zu erfüllen, ohne durch grösseren Abstand an Neutronenfluss zu verlieren.

Die Ursache der kurzen Lebensdauer des Targets ist im rapiden Tritiumverlust bei Beschuss im Beschleuniger zu suchen.



Für die Erklärung des Tritiumverlustes kommen folgende Effekte in Frage :

- a) Sputtering
- b) Entgasung der Oberfläche
- c) Verdrängung des Tritiums durch Deuterium (Diffusion)

Abb.3 zeigt ein Target, in dessen Brennfleckmitte das Titan vollkommen fehlt und die Kupferunterlage zu sehen ist. Der Titanverlust durch Sputtering ist sicherlich von den Eigenschaften der Schicht und diese sind wieder von der Herstellung abhängig. Es ist aber anzunehmen, dass der Zerstäubungsprozess, eine homogene Titanschicht vorausgesetzt, während der Bestrahlungszeit konstant ist und für den grossen Tritiumverlust des Targets zu Beginn der Bestrahlung nicht ausschliesslich verantwortlich gemacht werden kann.

Es ist bekannt, dass Metalloberflächen absorbierte Gase durch Teilchenbeschuss abgeben. In der Hochvakuumtechnik wird das Ionenbombardement zur Reinigung von Oberflächen verwendet, wobei die Spannungen 5-10 KV betragen. Umsomehr ist zu erwarten, dass durch das Deuteronenbombardement der Effekt wesentlich stärker sein wird und das Tritium auch aus tieferen Schichten herausgeschlagen wird. Der grosse Tritiumverlust zu Beginn der Bestrahlung eines Targets ist mit Sicherheit diesem Effekt zuzuschreiben.

Durch den Deuteronenbeschuss wird in der Titanschicht Deuterium angereichert. Bei einem Ionenstrom von 1 mA gelangen pro Sekunde 10^{16} Deuteronen in die Titanschicht. In 20 Minuten ist die Deuteronenmenge bereits in der Grössenordnung des in der Schicht vorhandenen Tritiums. Da die Wasserstoffaufnahme des Titans begrenzt ist, muss es notgedrungen zu einer Verdrängung des Tritiums durch das eingeschossene Deuterium kommen.

Um die Lebensdauer des Targets bei Beschuss zu verlängern, ist es also notwendig, die oben aufgezählten Effekte auszuschalten oder wenigstens weitgehend einzuschränken.

Gegen das Sputtering und Entgasen glauben wir, durch das Aufbringen einer Schutzschicht eine brauchbare Verbesserung gefunden zu haben. Diese Annahme stützt sich auf die Tatsache, dass die überdampften Targets von Käufern immer mehr bevorzugt werden, hauptsächlich bei Beschleunigern mit höherer Energie. Nach Messungen von Verbrauchern ist die Lebensdauer von überdampften Targets bei 200-400 keV 2-3mal grösser jener der gewöhnlichen Targets, z.B. bei Beschuss eines überdampften Targets mit 50 μ A und 2 MeV konnte nach 24 Stunden keine Abnahme der Neutronenausbeute festgestellt werden. Der Versuch musste wegen der Selbsttargetbildung (d-d Neutronenuntergrund) abgebrochen werden.

Es sollte auch möglich sein, die Bildung eines d-d Targets zu verhindern, und zwar mit einem Mehrschichttarget. Abb.4. Die Tritium tragende Titanschicht sei so dick, dass die Deuteronen mit 20 - 30 keV hindurchdringen und noch hinter eine dünne Sperrschicht gelangen. Die Sperrschicht besitze einen möglichst kleinen Diffusionskoeffizienten für Wasserstoff. Hinter der Sperrschicht befinde sich dann ein Reservoir für das Deuterium. Dieser Trick könnte auch zur Verlängerung der Lebensdauer des Targets beitragen, weil es zu keiner Verdrängung des Tritiums durch das eingeschossene Deuterium käme. Wir haben aber dieses Schichttarget selbst noch nicht ausprobiert.

Eine befriedigende Lösung des Targetproblems sollte in der Verwendung beweglicher Targets zu finden sein.

Während beim stehenden Target dauernd dieselbe Stelle beschossen wird, wird beim beweglichen Target die Belastung auf eine grössere Fläche verteilt. Je grösser diese Fläche ist, umso länger ist die Lebensdauer des Targets.

Unser bewegliches Target besteht aus einer Scheibe, die sich über den Ionenstrahl hinwegdreht. Die Targetbelastung wird durch die Bewegung auf einen Kreisring verteilt. Die Konstruktion (Abb.5) besteht aus einer Vakuumkammer, in welcher eine mittels

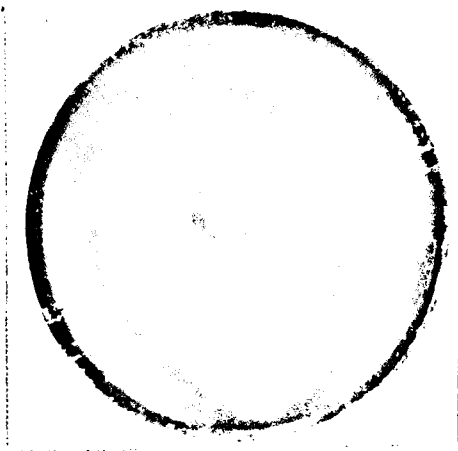


Abb. 3

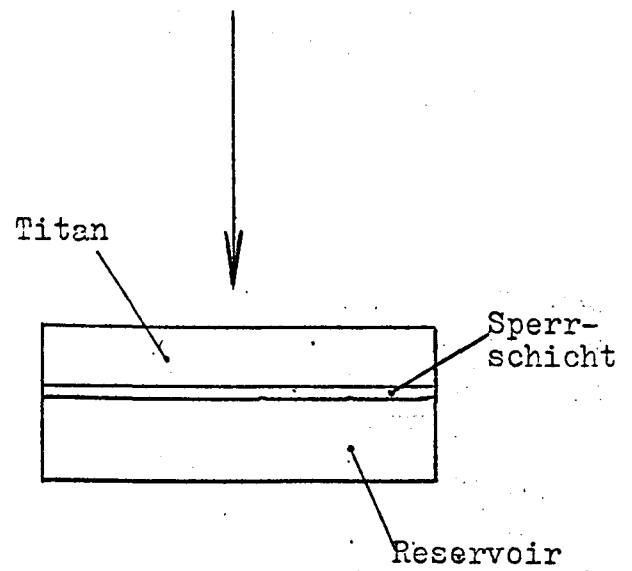


Abb. 4

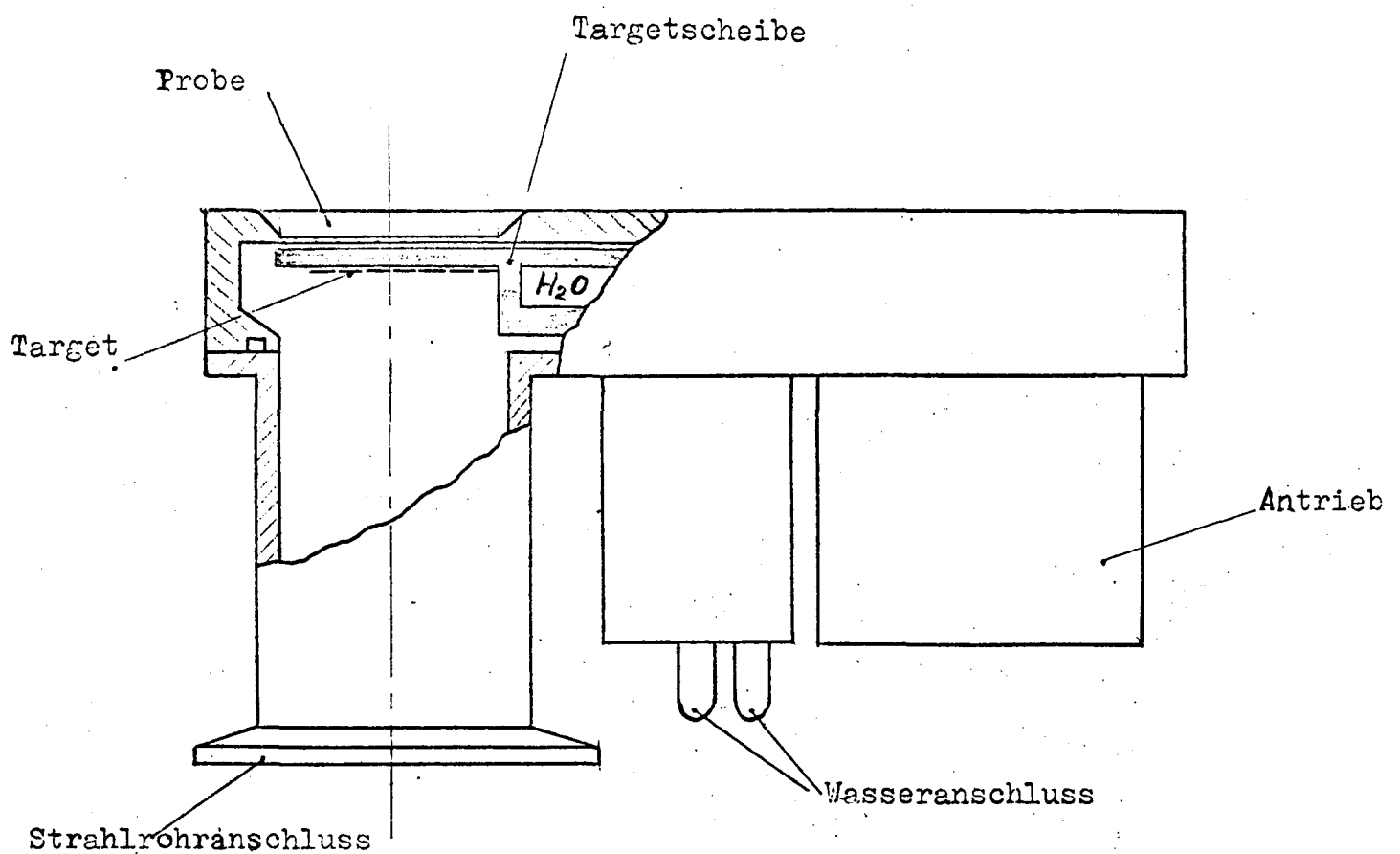


Abb. 5

Elektromotor angetriebene Scheibe rotiert. Die Scheibe ist wassergekühlt und trägt die direkt aufgedampfte Targetschicht. Das Target wird also nicht aufgelötet, sondern direkt aufgedampft.

Der Targetkreisring hat 100 mm Aussendurchmesser und 70 mm Innendurchmesser. Nimmt man den Ionenstrahl mit 10 mm Durchmesser an, besitzt das rotierende Target bereits die 35fache Lebensdauer eines nicht bewegten Targets. Verwendet man einen Kreisring mit Aluminiumschutzschicht, bekommt man im Durchschnitt die 85fache Lebensdauer eines gewöhnlichen Targets.

Unter bestimmten Bedingungen besitzt ein stehendes Target 1,5 Stunden Halbwertszeit. Unser rotierendes Target mit den obigen Abmessungen hat dann bei gleichen Bedingungen die Halbwertszeit von ca. 130 Stunden. In Arbeitsstunden umgerechnet bedeutet dies, dass man 6 Wochen ohne Targetsorgen den Betrieb aufrecht erhalten kann, bei 4stündiger Bestrahlung täglich, fünfmal in der Woche.

Neben der langen Halbwertszeit besitzt das rotierende Target noch einen zweiten grossen Vorteil. Bei 130 Stunden Halbwertszeit kann die Neutronenausbeute für Zeitintervalle von 1 - 2 Stunden als konstant angesehen werden. Man hat also für die meisten kernphysikalischen Experimente eine konstante Neutronenquelle.

Neben der langen Lebensdauer und der Konstanz der Quelle ist ein weiterer Vorteil des rotierenden Targets die hohe thermische Belastbarkeit. Die auf das Target abgegebene Leistung wird auf die ganze Kupferscheibe verteilt und über das Kühlwasser abgeführt. Entscheidend hierbei ist, dass die Titanschicht auf die Kupferscheibe aufgedampft ist und einen ausgezeichneten Wärmekontakt gewährleistet. Beim Auflöten ist der Wärmekontakt zwischen Target und Kühlung durch das Lot bedingt, abgesehen davon, dass wirklich einwandfreies Löten bei so grossen Flächen problematisch ist, den Strahlenschutz ganz ausser acht gelassen.

Um zu testen, welche thermische Belastung unser rotierendes Target im Stande ist abzuführen, wurde mit einer

Sauerstoffflamme das Target geheizt. Die von der Flamme abgegebene Leistung wurde kalorimetrisch gemessen. Bei ca. 150 Watt konnte das Target noch angegriffen werden. Die Temperatur betrug ca. 40 °C.

Als letzten Punkt möchte ich den Abstand Probe-Brennfleck erwähnen. Für den Experimentator ist meistens nicht die Gesamtausbeute, sondern der Neutronenfluss am Ort der Probe entscheidend. Für Generatoren mit einigen mA Ionenstrom und 150-200 keV reicht unsere Kühlung, die einen Abstand Probe-Brennfleck von 3 mm ergibt. Für höhere Belastungen, z.B. 10 - 20 mA ist der Flansch mit Kühlrippen vorgesehen.

Monsieur WINAND - PRESIDENT

Nous allons entendre la communication de Monsieur COSSUTA sur les cibles tournantes.

Monsieur COSSUTA

I am very grateful to the organizing committee for the opportunity to give this description of a versatile rotating target holder which might be of interest to many users of accelerating machines, especially those for the production of neutrons. In addition to the usual inherent advantages common to most types of rotating target assemblies described in the literature, this assembly possesses several attractive features which will be evident from the simplicity of its construction and form. The advantages in using such an assembly are :

- a) long target life, equivalent to 25 times that of a 1 in.diameter target;
- b) practically constant and high neutron flux maintained over a correspondingly longer time interval;
- c) less time spent in changing targets and lower cost per unit area of the target;

- d) possibility of bombarding several targets or samples under identical ion beam conditions;
- e) possibility of using several different targets such as deuterium, tritium, lithium, and beryllium fixed on the same rotating plate for the production of neutrons of various energies;
- f) beam currents of several mA can be used because of improved heat dissipation due to rotation, and
- g) samples for neutron irradiation can be placed as close as 3 mm to the target which is considerably closer than with many standard commercially available stationary target holders.

The cross-section of the Rotating Target Assembly type RTH.2 is shown in Fig.1. The connection to the accelerator drift tube, shown on the left, can differ in design to suit the accelerator. The vacuum container houses the target carrying plate onto which the annular tritium target is soldered. In each revolution the whole area of the annular target is exposed to the ion beam from the accelerator, the rotating being affected by means of a small electric motor and two gears driving the shaft of the target carrying plate. This shaft consists of two concentric tubes, used as inlet and outlet for the cooling water. By means of radial blades situated on the inside of the hollow copper target plate the water is made to flow uniformly underneath the target to the edge of the plate, and then along the back and out through the inner concentric tube. Another version of the target carrying plate is shown in the assembly of Fig.2. In this case the water cooled region extends only as far as the inner edge of the target annulus, so that this plate is actually cooled by conduction. This design allows shorter sample-to-target distance than the plate in Fig.1. The two versions of target plates are interchangeable. They are also

Figure I

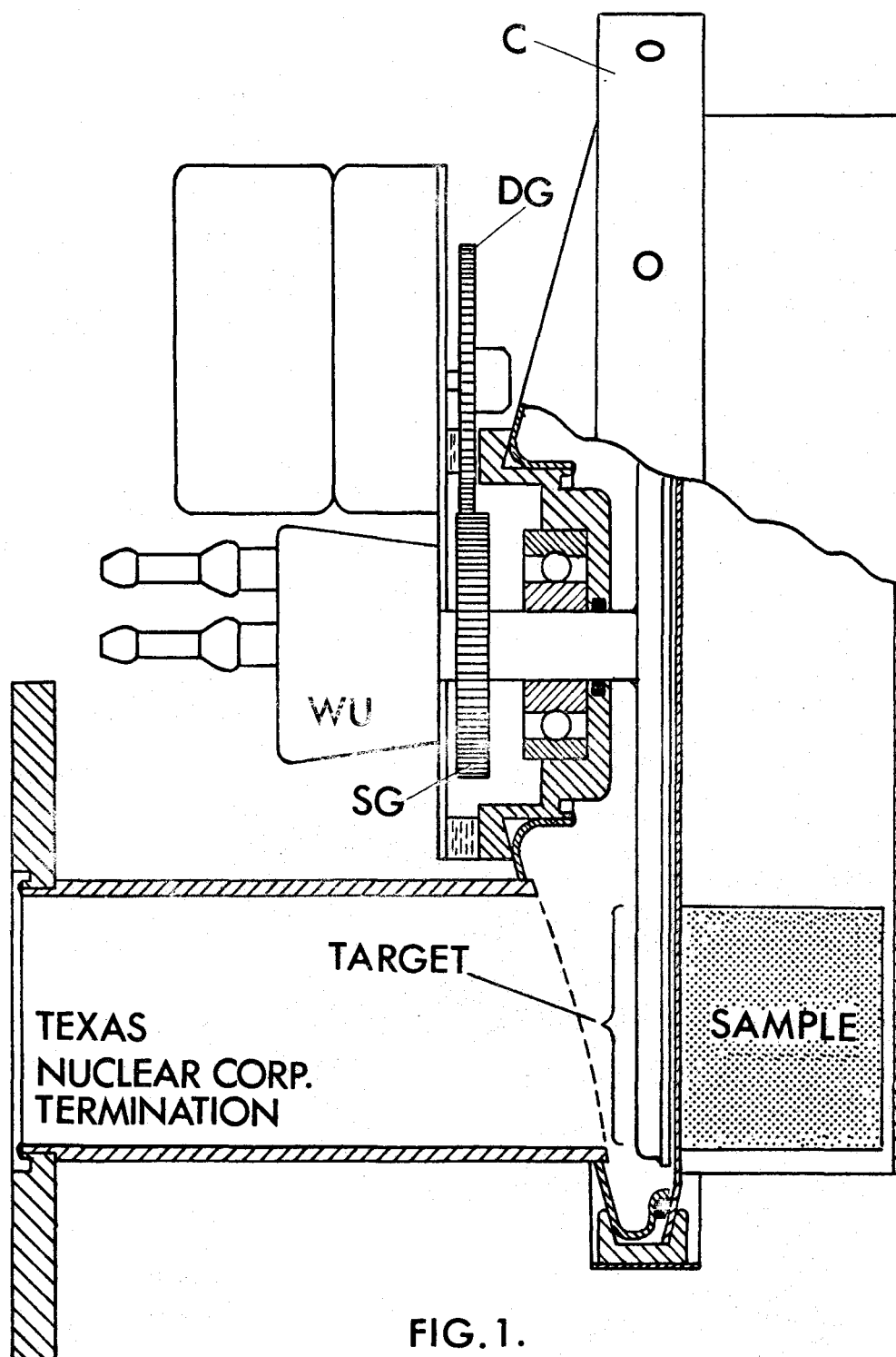


FIG. 1.

available in pure silver which may be preferable when higher beam current densities are employed. A graduated dial calibrated in degrees from 0 - 360° is provided to facilitate accurate and reproducible positioning of the target plate. This may be especially useful when several targets are mounted within the same rotating assembly. The assembly is easily dismantled by releasing a single-bolt clamp C and the target carrying plate can be withdrawn after disconnecting the water unit WU and the gears DG and SG. Special attention was paid in this design to simplicity of construction, to facilitate servicing, and soldering of the target foil. For this purpose the flat target carrying plate is heated on an electric laboratory hot-plate and a layer of low melting-point solder alloy (180°C) or indium (156°C) melted on the surface where the target is to be situated. The target foil, which must be tinned beforehand, is placed into position and pressed down with a weight to ensure flatness of the foil. During soldering the temperature of the hot-plate should be measured with a thermocouple junction such as Chromel-Alumel and never allowed to exceed 200°C. Tritium targets can withstand temperatures up to 2500C without losing any significant quantity of absorbed tritium and there is therefore no danger of losing tritium during soldering. However, it is recommended that soldering be carried out in a fume cupboard and the normal precautions for dealing with the radioactive sources observed. Detailed instructions are supplied to the user regarding this procedure.

Attention has also been paid to the accomodation of various designs of sample transfer systems, as used in activation analysis for the transfer of samples to the target for irradiation, and back to the counting system for analysis. Two versions of back covers are available. The first type shown in Fig.1 is suitable for vertical entry of dual sample transfer tubes, while the second type (Fig.2) is designed for a horizontal

Figure 2

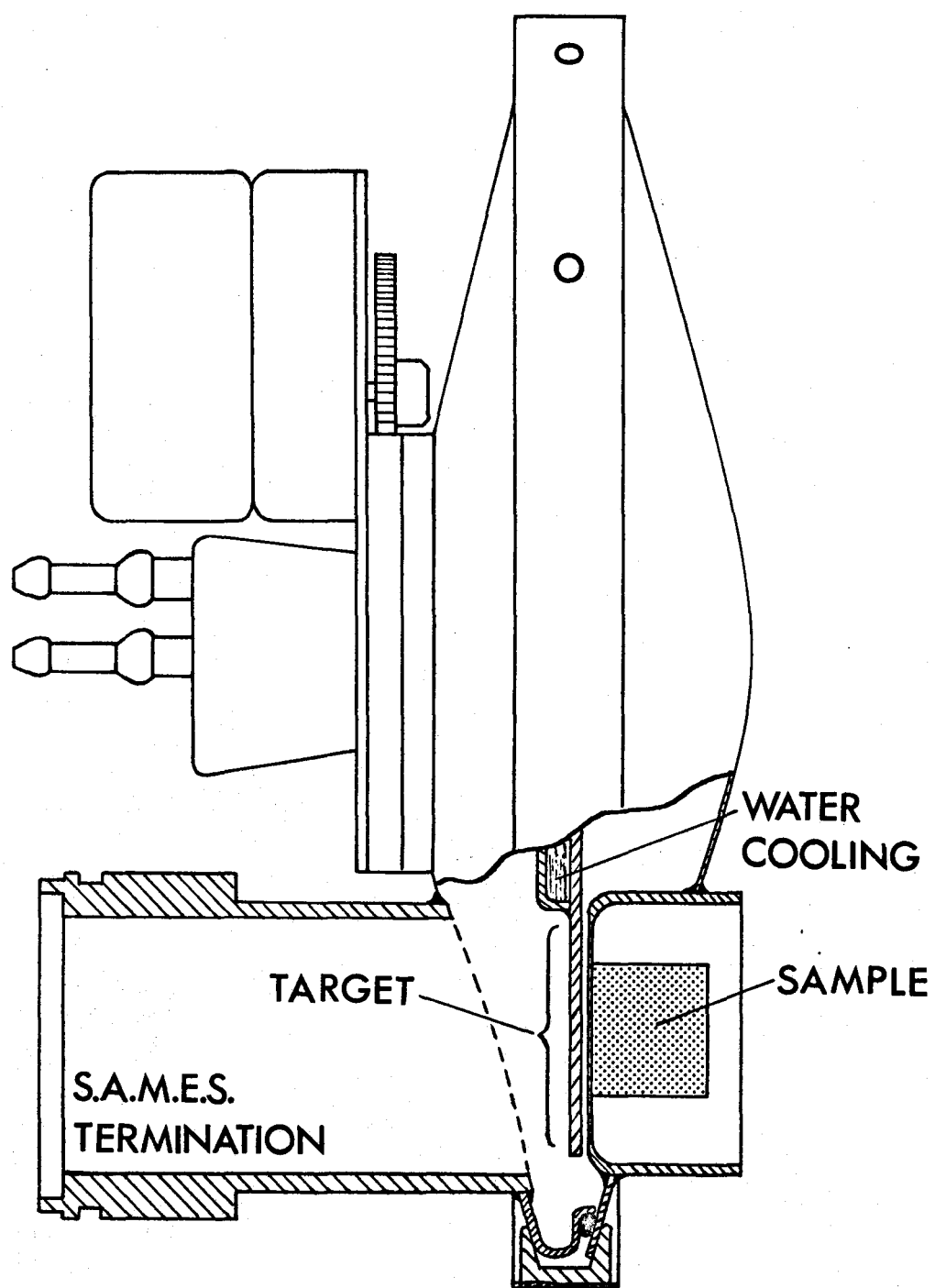


FIG.2.

sample transfer system with a single tube. The two covers are interchangeable, and both made from thin (0.8mm) stainless steel to keep the sample-to-target distance to a minimum.

In conclusion, the characteristics advantages of the present rotating target assembly are as follows: purely from the design parameters the target half-life is about 30 hours with 4 curies/in² targets at 1 mA/in² and correspondingly longer with targets containing 8 curies/in² of tritium. It is expected that target life increases even further because of the reduced local heating of the target surface due to rotation. The decline of the neutron yield with time is improved by a similar factor, and may also be affected favourably by the rotation of the target, because of the observation that the yield from a stationary target under identical operating conditions is greater after the target is allowed a short rest. Higher beam current densities can be employed due to improved cooling and consequently neutron yields approaching 10¹² n/s can be generated with accelerators providing high ion currents at an accelerating potential in the region of 500 kV. Last, but not less important is the financial saving in buying large area annular targets due to favourable price per unit area. This makes the target assembly pay for itself within a remarkably short time and the saving on subsequent targets is therefore even greater.

If there are any questions, I shall be glad to answer anybody interested in this design. Thank you.

Monsieur LAVERLOCHERE

Je voudrais demander à Monsieur COSSUTA quelques chiffres concernant les caractéristiques de cette cible :

surface totale tritiée,
diamètre maximum des échantillons
qu'on peut irradier sur une telle cible,

et nombre de curies que peut contenir
cette cible ?

Enfin, pensez-vous qu'une telle cible soit plus économique
qu'une cible standard fixe ?

Autrement dit, est-ce que la durée de vie divisé par le nombre
de curies par exemple est la même dans le cas d'une cible ro-
tative et dans le cas d'une cible fixe.

Monsieur COSSUTA

As regards the first question the total area of the
tritiated target is 18.9 in^2 which equals 121 cm^2 . This corres-
ponds to an equivalent area of 25 pieces of 1 inch diameter tar-
gets. The second question concerns the size of the sample which
can be irradiated with this unit. Practically there is no limit
to the size of the sample than can be put quite close to the tar-
get. The back cover in Fig. 1 allows samples of 2 in.dia. x 1 in.
length to be accomodated, but with slight modification of the
same design much larger samples can be used. The total amount
of tritium which would be contained in an annular target of
 4 curies/in^2 equals about 75 curies. The price of targets per
unit area is considerably more favourable when one buys a large
area target, and this is precisely why there is a great financial
advantage in using large area annular targets with a rotating
target holder. The savings per unit area differ somewhat de-
pending on the manufacturer, but may amount to 50 - 70% or
more. The purchase of the target holder is theretore an invest-
ment and saving on subsequent targets is even greater. In addition
to this one has the many other advantages which the rotating target
assembly offers. The long target life is one of these valuable
features. The half-life will be proportional to the number of
curies contained in the target, and there may be some further
increase as compared to half-life of stationary targets because
of the effects connected with the improved cooling of the surface
layer due to rotation.

Monsieur FABIAN

Da der Projektionsapparat jetzt zur Verfügung steht, möchte ich nachholen, unsere Bilder zu projizieren.

Darstellung N° 1 zeigt Neutronenausbeutekurven gemessen von einer Gruppe im Institut für Radiumforschung. Die erste, die oberste Kurve bezeichnet mit 2TA ist ein 2 C/in^2 Target mit der Halbwertszeit von $\sim 38 \text{ min}$. Die zweite Kurve ist die Ausbeute gemessen an einem Target 2TB, das Target ist mit Aluminium überdampft, die Halbwertszeit ist die doppelte des unüberdampften Targets. Die dritte Kurve ist die Ausbeute des rotierenden Targets mit einer Schicht von 2 C/in^2 . Die Versuchsdauer war insgesamt 1,5 Stunden und man konnte nach dieser Zeit keine Ausbeuteverminderung feststellen.

Bild 2 zeigt die rotierende Targetkonstruktion. Der Aussendurchmesser beträgt 13 cm.

Bild 3 zeigt die rotierende Scheibe. Der schmale Ring am Rand der Scheibe ist nicht bedampft. Sollte man neben das Target schießen, wird nicht die ungekühlte Targetkammer getroffen. Die Titanschicht auf der Scheibe können wir von $1\text{-}20 \text{ C/in}^2$ dick machen.

Der grosse Vorteil des direkten Aufdampfens ist naheliegend. So grosse Flächen einwandfrei zu löten, ist problematisch. Man muss das Lot doch erweichen, darf aber nicht mit der Temperatur über 200°C gehen, weil man sonst schon Tritium verliert, sich selbst und Werkzeuge verseucht. Bei höheren Ionenströmen, z.B. 10 mA oder mehr, ist Löten nicht mehr möglich. Bei Verwendung von Erbiumtargets wird das Löten überhaupt sinnlos.

Ich möchte noch den Preis für das rotierende Target nennen. 2.000 DM für die Konstruktion, die rotierende Scheibe mit 2 C/in^2 -Schicht kommt auf ca. 800.-- DM.

Zu einem überraschenden Resultat kommt man, wenn man diesen Preis der Kostenberechnung einer Beschleunigerbetriebsstunde

zugrunde legt. Es sei die Halbwertszeit des rotierenden Targets nicht mit 130 Stunden angenommen, wie vorhin gerechnet, sondern nur mit 65 Stunden. Die Betriebsstunde kommt auf etwas mehr als 12.-- DM.

Abb.4 zeigt unser im Bau befindliches Target. Es ist ausschliesslich für Höchstbelastungen gedacht. Wir haben jegliche organische Dichtungsmaterialien vermieden. Es ist zu bedenken, dass die Simmer-Ringe, die notwendig sind beim Bau des rotierenden Targets, bei Neutronendosen von 10^{15} - 10^{16} bereits spröde werden. Man kann wohl bei der Konstruktion mit der Simmer-Ring-Dichtung weiter weggehen vom Brennfleck, aber bei Ionenströmen von 20 mA oder mehr wird das Dichtungsöl und der Simmer-Ring zu einem Problem.

Das Wesentliche der Hochleistungstargetkonstruktion ist ein Federrohr. Es ist kardanisch aufgehängt, um konstante Distanz Probe-Brennfleck zu gewährleisten. Ein Motor bewegt das Target so, dass der Ionenstrahl einen Kreisring oder eine Sinuskurve beschreibt.

Auf Abb.5 ist der Targetkopf zu sehen. In der Mitte des Topfes das aufgedampfte Titan. Danke schön.

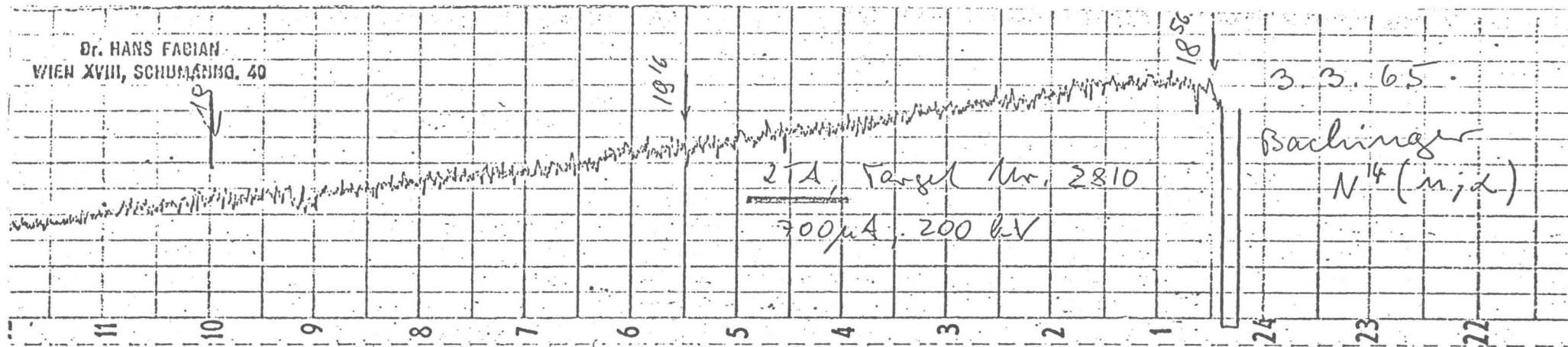
Monsieur WINAND - PRESIDENT

Avant l'interruption, nous allons entreprendre maintenant la discussion des deux communications précédentes.

Monsieur COSSUTA

If I may I would like to mention a few details which may be of interest to the people handling and soldering targets in their laboratories, because it seems that the health hazard involved in this procedure tends to be over-emphasized. On many occasions we have soldered various types of Amersham targets on to different kinds of backing plates, using various monitoring

Dr. HANS FACIAN
WIEN XVIII, SCHUMANNG. 40



Neutronenausbeute-
kurven von Titan -
Tritium Targets,
gemessen bei Arbei-
ten am Beschleuni-
ger des Institut
für Radiumforschung
und Kernphysik in
W i e n

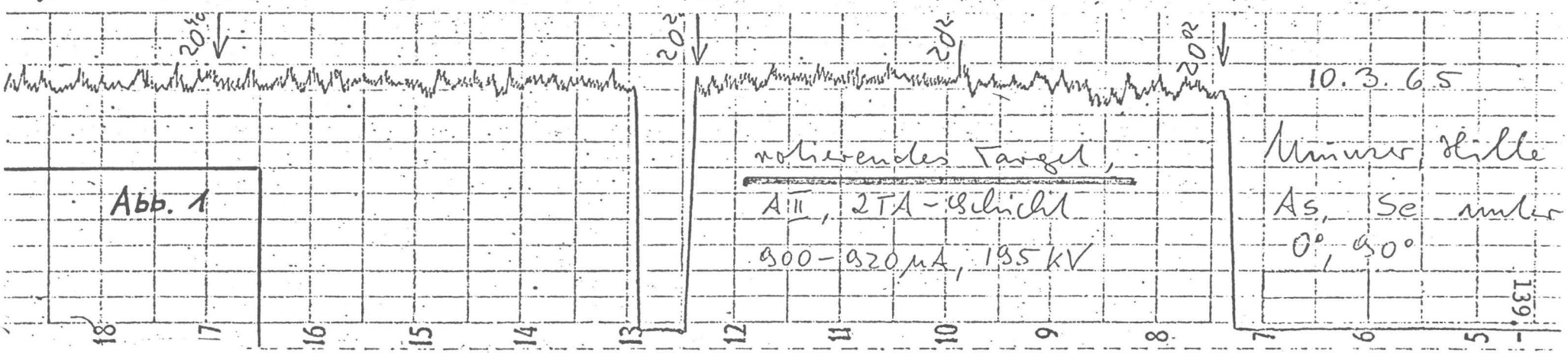
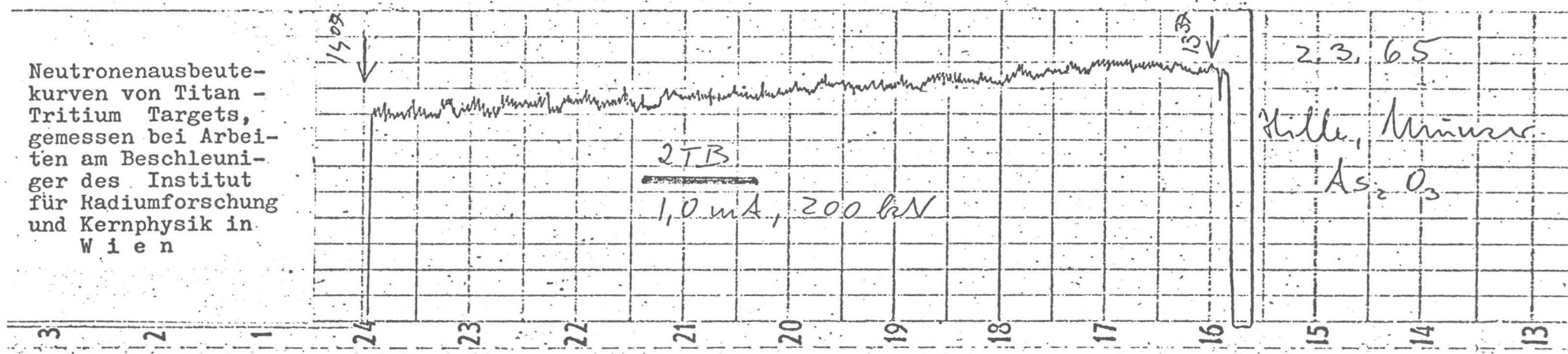


Abb. 1

Rotierende Targetkonstruktion



Abb. 2

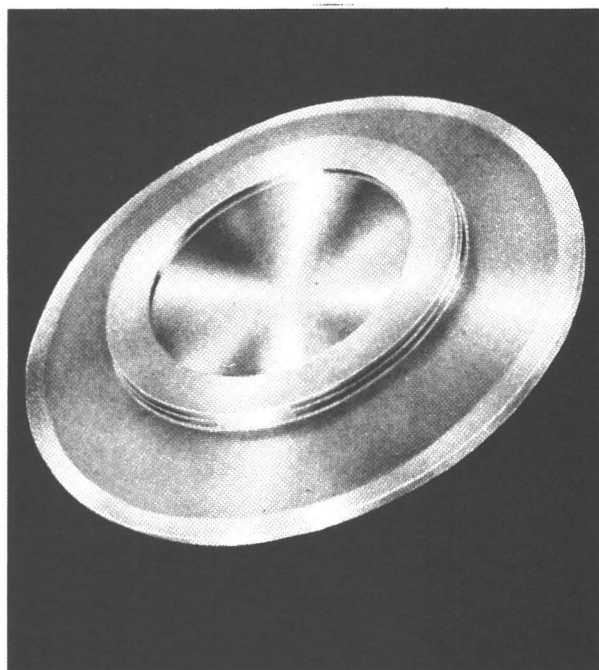


Abb. 3

Hochleistungstarget - Konstruktion



Abb. 4

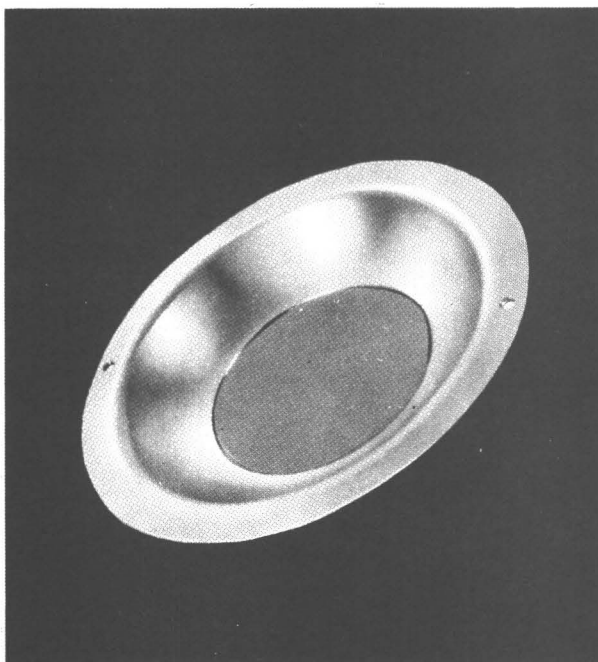


Abb. 5

instruments for the detection of tritium gas and particulate matter in the form of titanium tritide which might have come off the target during the process. As a further precaution we have sometimes measured the quantity of tritium in urine of the people soldering the targets, but all the above tests revealed negligible hazard. Normally a ventilated fume cupboard is adequate for the small quantity of tritium gas which diffuses out of the target during the soldering. Only 1 % of tritium would be lost in 24 hours with the target at 250°C, which shows that it is not possible to lose tritium from the target if the temperature of the hot-plate is controlled. Particles of titanium tritide present a hazard if inhaled and care should therefore be taken not to damage the surface of the target. However, we have intentionally wiped the surface of the target with paper tissue fairly vigorously and could not detect any titanium tritide on the paper. Similar tests have been carried out at Wantage Research Laboratory (A.E.R.E.) and Royal Military College of Science.

If however, the soldering of the target presents any difficulties to anyone anxious to use our rotating target assembly, it is always possible to have the target supplied already mounted on the cooling plate. Replacement targets will be available already mounted on the plate directly from manufacturer. The old plate can be disposed of as radioactive waste or returned to the manufacturer.

Monsieur MUNZER

Es gibt einen wesentlichen Grund gegen das Auflöten von Targets : Es ist unökonomisch eine Targetschicht zu haben, die bis zu 200° erhitzt werden kann, wie es im Fall von Titantritium der Fall ist, und dann ein Lot zu verwenden mit einem Schmelzpunkt von beispielsweise 120°. Man kann auf diese Art die Temperaturbeständigkeit des Targets, und damit die Belastung, und damit die

Neutronenausbeute, die man haben könnte, nicht ausnützen. In anderen Worten könnte man sagen, im Fall des Auflötens des Targets muss die Kühlung nicht der Targetschicht, sondern dem Lot angepasst werden.

Monsieur REIFENSCHWEILER

Ich möchte hier doch hinzufügen, dass wir zu Beginn unserer Arbeiten mit abgeschmolzenen Neutronenröhren konventionelle Targets benutzt haben, Titan-Tritiumtargets und Zirkontritiumtargets, die wir von Harwell bezogen hatten, und dass wir diese Targets in Vacuum mit einem Weichlot aufgelötet haben, das einen Schmelzpunkt von etwa 200°C hatte. Auf diese Weise konnte man die Temperaturbeständigkeit dieser Targets doch sehr gut ausnützen. Über diese Arbeiten wurde schon früher berichtet, (x) ich wollte hier nur nochmals darauf hinweisen, dass ein Auflöten von Targets ohne wesentliche Nachteile möglich ist.

Abschliessend möchte ich jedoch noch sagen, dass ein direktes Aufdampfen des tritiumabsorbierenden Metalls auf das Bauelement, das das Target trägt, sicher nicht von Nachteil ist, sondern Vorteile, z.B. bessere Wärmeableitung, bietet. Es dürfte deshalb überall, wo es anwendbar ist, den Vorzug gegenüber einem Auflöten verdienen. So verwenden wir z.B. in unseren abgeschmolzenen Neutronenröhren mit den selbstbeifüllenden Targets die Methode des direkten Aufdampfens.

Monsieur MUNZER

Ich möchte nur ein paar Worte noch zu dem sagen, was Herr REIFENSCHWEILER erwähnt hat : Es ist für einen erfahrenen Techniker oder Physiker sicherlich möglich, mit einem hochschmelzenden Lot bei 200° ein Target aufzulöten, ohne Tritium zu verlieren.

(x) Philips Res.Repts.16, 412, 1961 und Proc.Meeting Liège, Febr. 17 - 18, 1964, EUR 1815. e, S.26.

Im Laufe der letzten Zeit haben jedoch eine Anzahl Leute, die keine Physiker sind, sich Neutronengeneratoren gekauft und man muss daher die Fähigkeiten des durchschnittlichen Beschleunigerbenützers berücksichtigen.

Monsieur REIFENSCHWEILER

Ich bin mit Herrn MUNZER einig, dass die Technik des Auflötens nicht von jedem Benutzer von Targets durchgeführt werden kann, sondern wirklich nur von einem erfahrenen Technologen. Aber im Prinzip kann man das Auflöten von Targets durchführen.

Monsieur BARRATT

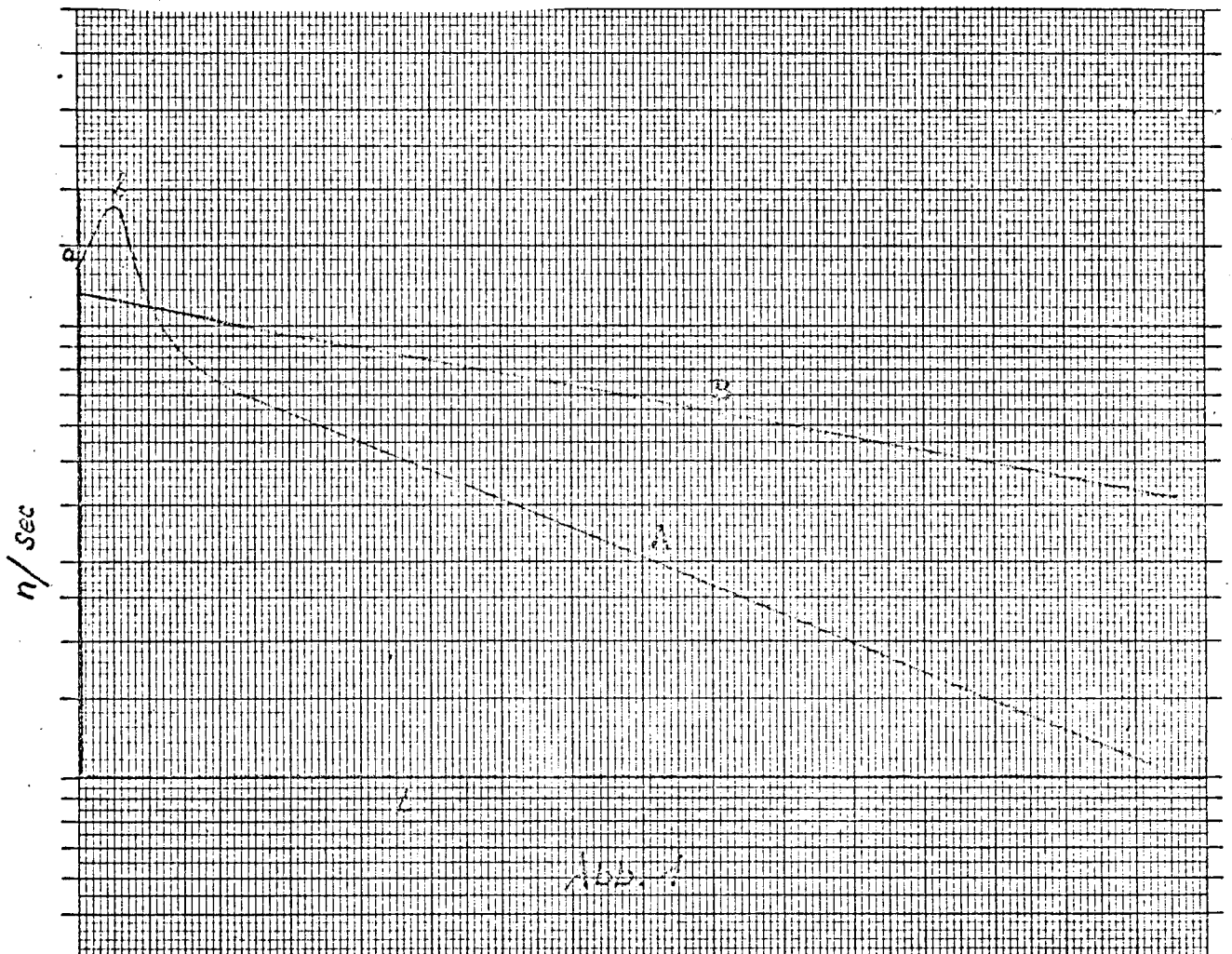
Could I ask Monsieur FABIAN one or two questions concerning his rotating targets ?

- 1) Could he tell us the thickness of the aluminium coating he uses on his tritide target ?
- 2) The speed of rotation in R.P.M. of the plate and also the volume of water in Litres/min. required to cool the target ?

Monsieur FABIAN

Die erste Frage war die Aluminiumschuttschicht. Ich möchte zunächst die Neutronenausbeute eines überdampften und unüberdampften Targets vergleichen. Abb.1A stellt die Ausbeute eines nicht überdampften Targets dar. (willkürliche Einheiten). Der Kurvenanstieg von a-b entspricht der Oberflächenverunreinigung und dauert so lange, bis man das Titanoxyd von der Oberfläche weggeschossen hat. Der Punkt b liegt je nach Strahlintensität bei 2-10 Minuten. Bei b hat man die maximale Ausbeute, ab b fällt dann die Ausbeute ab.

Beim überdampften Target sieht die Ausbeute entsprechend Abb.1B aus. Die Aluminiumschicht bewirkt natürlich, dem



Energieverlust der Deuteronen entsprechend, eine Reduktion der Ausbeute. Der Energieverlust in der Schicht beträgt 10-15 keV.

Wenn man aber betrachtet, dass die maximale Ausbeute nur 2 - 10 min. dauert, ist es durchaus gerechtfertigt, eine Aluminiumschicht aufzubringen, welche die Ausbeute auf 10 Minuten um 10% vermindert. Nach dieser Zeit liegt die Ausbeute des überdampften Targets höher.

Für 150 - 200 keV Deuteronenenergie beträgt die Aluminiumschicht $0,05 \text{ mg/cm}^2$. Für höhere Energien ist es zweckmässig, dickere Schichten aufzubringen.

Die zweite Frage von Mr. BARRATT war die Rotationsgeschwindigkeit des Targets. Am idealsten ist natürlich, wenn man die Belastung auf die gesamte Oberfläche gleichmässig verteilt, also unendlich grosse Geschwindigkeit einführt. In der Praxis reicht es aber, wenn man eine Geschwindigkeit einführt, die der Wärmeleitfähigkeit des Kupfers entspricht. In unserem Fall ist die Geschwindigkeit eine Umdrehung pro Sekunde. Die dritte Frage war die durchfliessende Wassermenge. Bei unseren Versuchen waren es 1 - 2 Liter pro Minute.

Dr. PETER

Ich wollte Herrn REIFENSCHWEILER noch zu bedenken geben, wenn er ein Lot verwendet, das bei etwa 220°C schmilzt, dass er dadurch die verfügbare Dauertemperatur für das Target ganz entscheidend herabsetzt, u.zw., ich würde schätzen, um etwa $50 - 60^\circ\text{C}$, jedes zinnhaltige Lot macht nämlich bei Dauertemperaturen in diesem Bereich, ich bin kein Metallurge, irgend einen Transition Point durch einen Uebergangspunkt, bei dem eine Kristallisation auftritt, und wenn man diese Temperaturen längere Zeit einwirken lässt, die immerhin $50 - 60^\circ$ unter dem Schmelzpunkt liegen, dann gehen diese Lötverbindungen plötzlich auf.

Monsieur REIFENSCHWEILER

Ich möchte dazu ausführen, dass wir diese Schwierigkeiten nicht beobachtet haben. Wir haben die Temperaturbeständigkeit von Titantritiumtargets gemessen und haben festgestellt, dass diese Targets bis etwa 200°C in Vakuum stabil sind. (x)

Danach haben wir ein Zinnlot verwendet, das einen Schmelzpunkt von etwa 200°C hatte. Wir haben diese Targets in Vakuum aufgelötet und wir haben eine der so präparierten Neutronenröhren 200 Stunden lang betrieben, ohne dass bei einem Targetstrom von etwa 100 Microamp. und einer Beschleunigungsspannung von 125 KV bei einer Neutronenausbeute von einigen 10^8 Neutronen pro Sekunde eine Abnahme der Neutronenausbeute oder sonstige Schwierigkeiten aufgetreten wären.

Monsieur WINAND - PRESIDENT

S'il n'y a pas de questions complémentaires, nous allons passer au point 4 H - Pulvérisation cathodique. (Sputtering). Je prie Monsieur LOMER de bien vouloir venir faire son exposé.

Monsieur LOMER1.) INTRODUCTION

The life of targets in conventional neutron generators in which a beam of deuterons is accelerated onto a tritium loaded target is limited by dilution of the tritium in the target by the bombarding deuterons ^{1,2}. The neutron output decreases so rapidly that at a level of 10^{10} n/sec the target life is only of the order of one hour.

(x) Philips Res. Repts. 16, 412, 1961 und Proc.Meeting Liège Febr. 17 - 18, 1964, EUR 1815 e, S. 26.

In sealed-off neutron tubes using the D-T reaction, it is possible to use a mixed beam of deuterons and tritons bombarding a mixed gas target³. Recently such a tube has been developed with an output of 10^{10} neutron/sec⁴. Since the dilution problem is overcome by the use of a gas mixture which circulates between ion source and target the target life is extended to hundreds of hours. Under these conditions sputtering of the target material, in this case erbium, has been observed and studied.

2.) EXPERIMENTAL-TECHNIQUES

The sealed-off neutron generator used for these experiments is shown in Figure 1. The tube consists of an r.f. ion source from which a mixed beam of deuterons and tritons is accelerated onto a mixed gas target. The tubes were rigorously cleaned and processed to avoid subsequent contamination of the D-T mixture, which was supplied from a heated titanium replenisher. Thus the ion beam is believed to be of high purity, with a high percentage of atomic ions, as usually found from r.f. ion sources. The tubes were operated at a level of about 10^{10} n/sec. with an ion current of approximately 1.5 mA and an accelerating voltage of 110 kV. Thin targets were used in order to study the effects of sputtering.

3.) BEHAVIOUR OF THIN TARGETS

Tubes with erbium targets, having a thickness of approximately 2 mg / cm^2 , were operated under standard conditions for long periods during which the neutron output was continuously monitored by a high pressure hydrogen ionization chamber. The neutron output remained constant for about 20 hours after which it decreased steadily to a half-value at about 60 hours. Typical results are shown in Figure 2. After such a test, the target material has been largely removed by sputtering as shown in Figure 3. The sputtered region is determined by the diameter

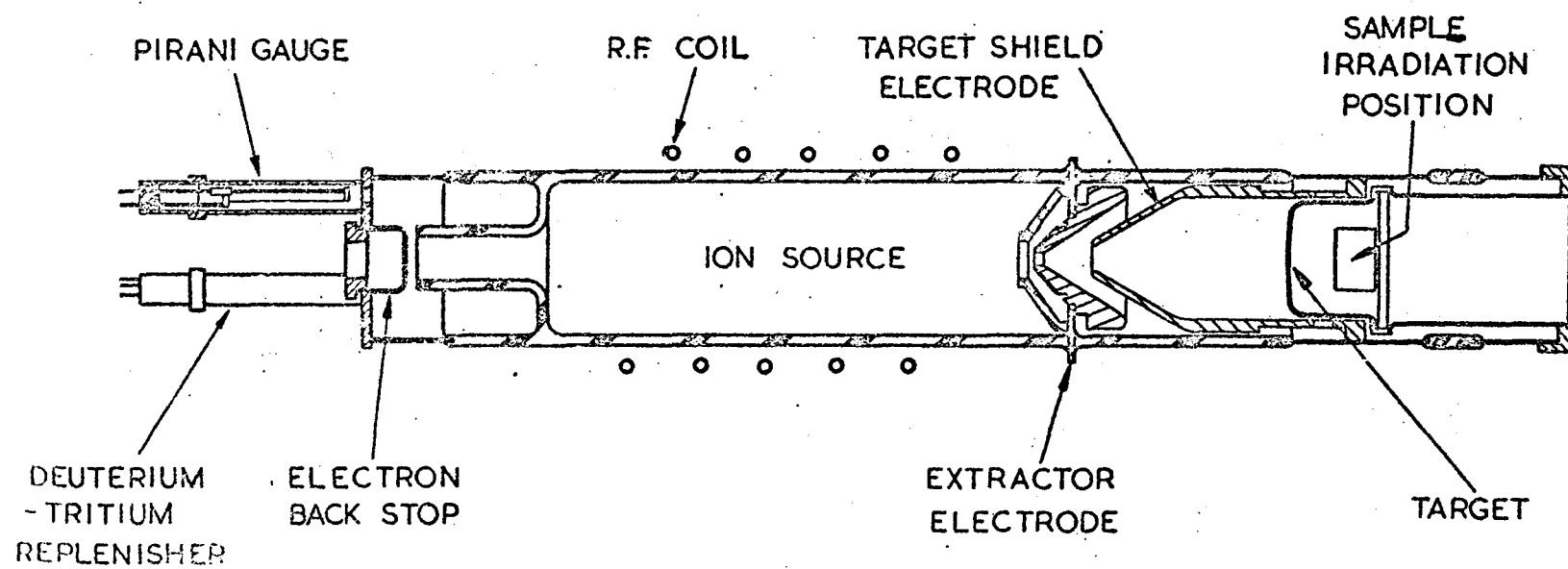


Figure 1)

FIGURE 1. L-Tube 10^{10} Neutrons/Sec.

Figure 2)

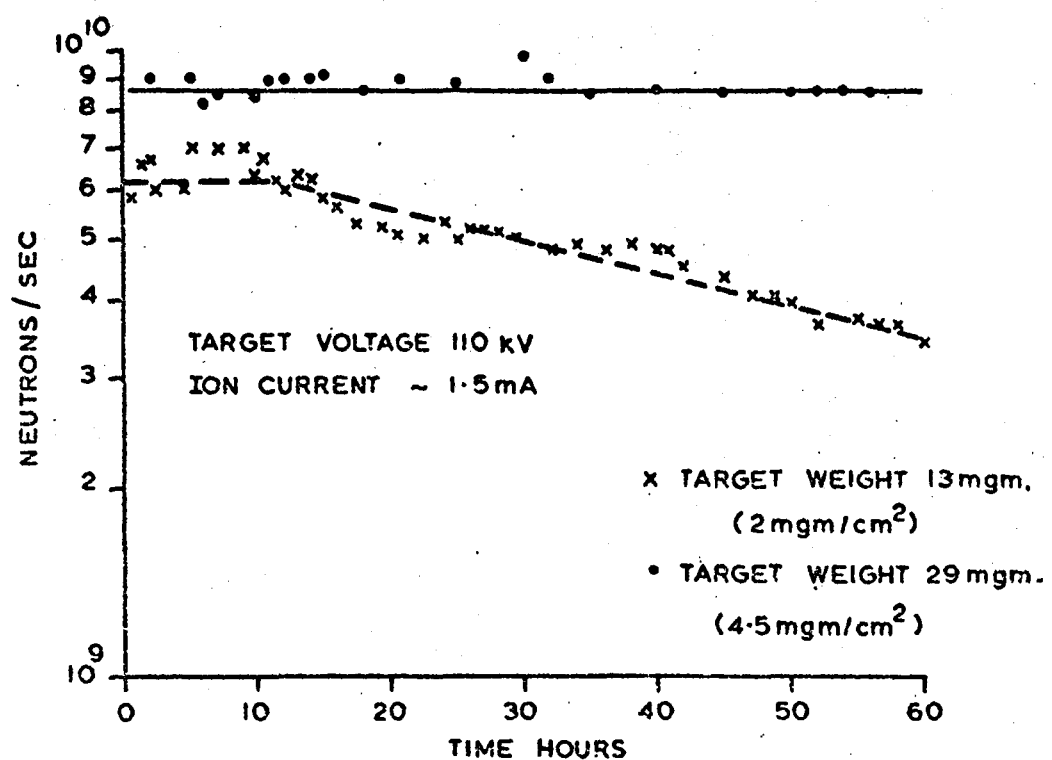


FIGURE 2. Time Dependence of Neutron Output.

Figure 3)

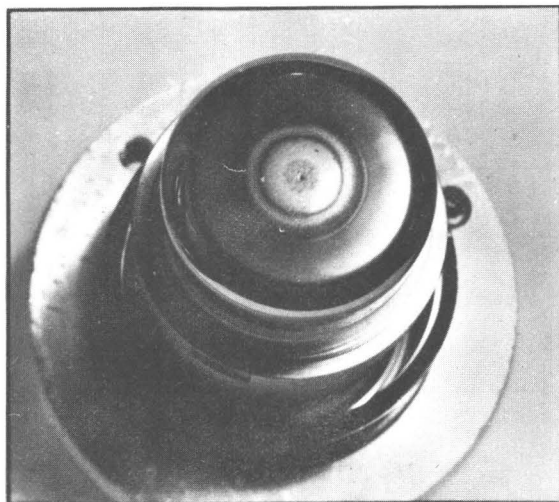
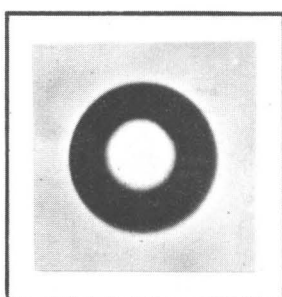
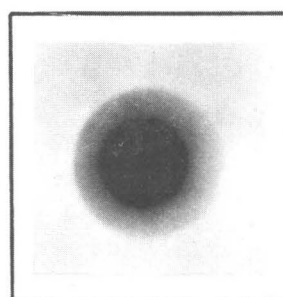


FIGURE 3. Target.

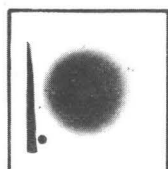


(d) AFTER 68 HOURS

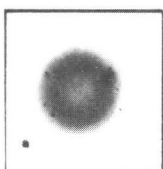


(b) AFTER 4 HOURS

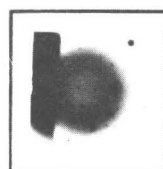
FIGURE 4. Tritium Autoradiograph.



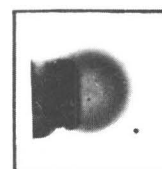
(a) 30 HOURS.



(b) 45 HOURS



(c) 50 HOURS



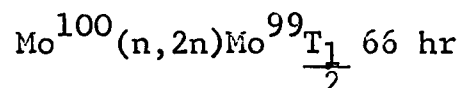
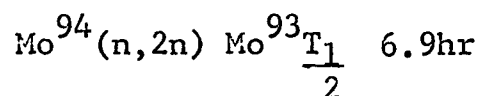
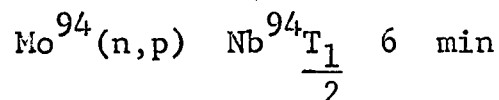
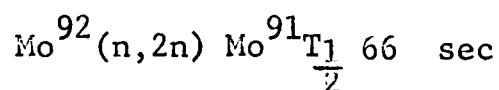
(d) 58 HOURS

FIGURE 5. Radiographs of activity in target pressing.

of the ion beam, which is about 16 mm. Autoradiographs to determine the tritium distribution at the end of the test showed that there was a deficiency of tritium in the sputtered region (figure 4a) whereas after only a short period of operation tritium is concentrated in this central region (Figure 4b)

The state of the target was studied during the tests without destroying the tube by another autoradiographic technique. The fast neutrons produced at the target activate the molybdenum substrate. The distribution of this activity can be observed by an X-ray film in contact with the back of the molybdenum target.

The possible activation reactions are:-



of which it is thought that the second is the significant reaction as there is a several minute cooling period before taking the autoradiographs and there is no significant radiograph obtainable after 5 hours cooling. Typical results for a 2 mg /cm^2 target are shown in figure 5. During the first 20 hours the activity is uniform over a circle of diameter 16 mm, thus confirming the diameter of the ion beam (figure 5a). Successive autoradiographs show that the centre of the target fails to produce neutrons and that the neutron deficient region increases in diameter during the test.

The last result corresponds closely with the related tritium-deficient region and sputtered region as shown in figures 3 and 4.

Since the sputtering rate is determined by the ion current density, the variations in the sputtering rate over the surface of the target, are due to the spatial distribution of ions in the beam. Thus from the autoradiographs shown in figure 5 the ion beam profile can be estimated. By integration over the ion beam, the ion current density at any point on the target can now be calculated. A value can then be determined for the sputtering coefficient, since the time taken to sputter a measured thickness of target material is now known. These results lead to a value for the sputtering rate of 0.007 atoms/ion for a 50/50 mixture of deuterium and tritium ions (mostly atomic) impinging on a erbium target with an energy of 110 keV.

The extent to which target sputtering is a limitation to the life of sealed-off neutron tubes can be assessed from these results. A sputtering rate of $4.5 \text{ mgm/cm}^2/100 \text{ hrs}$ is estimated for a current density of 1 mA/sq.cm and preliminary results with a 4.5 mg/cm^2 target at this current density have shown a constant neutron output for 65 hrs (figure 2) at which time the experiment was terminated for other reasons. From these results it is concluded that a 5 sq.cm target, as used in most accelerators, bombarded with a uniform 1 mA ion beam, will sputter at a rate of about $1 \text{ mg/cm}^2/100 \text{ hrs}$ so that a 10 mg/cm^2 target should last for 1000 hrs.

4.) ALTERNATIVE TARGET MATERIALS

Erbium was chosen as target material because of its high temperature characteristics. It may be worth while to consider alternative materials in the light of expected sputtering performance.

Theoretical estimates of sputtering have been made by Bulgakov⁵. Figure 6 illustrates values of the sputtering coefficients derived from Bulgakov's theory for a variety of metals and hydride forming elements which may be possible alternative target materials. Values of the latent heat of sublimation E_H have been taken from Habermann and Daane⁶ and the Metals Reference Book⁷.

The value of S for erbium at 110 keV for a mixed beam of deuterons and tritons is 0.011 which is in fairly good agreement with the experimental value of 0.007 when it is considered that no account has been taken of the effect on the theory of the deuterium and tritium present in the target.

Improved targets, from the sputtering viewpoint, might be expected on this theory by using lithium, titanium, zirconium, scandium or yttrium. Of these lithium, titanium and zirconium are known to be poor at elevated temperature so that the choice rests with scandium or yttrium. This is expected to give an improvement factor of approximately 2.5.

A general improvement in target life could also be achieved by increase of bombarding voltage with a predicted fall in S inversely with voltage. However, from the power handling point of view it has already been shown that increase beyond 150 kV is not worthwhile.

5.) CONCLUSION

In sealed-off neutron tubes one of the factors controlling life is target sputtering. Using autoradiographic techniques the sputtering coefficient for erbium bombarded with 110 keV mixed deuterium and tritium ions has been measured as 0.007. Hence it has been deduced that at a current of 1 mA a 10 mg/cm² erbium target of area 5 sq.cm will have 1000 hours life from the sputtering viewpoint. Alternative target materials such as scandium and yttrium are suggested from theory as being likely to give even lower sputtering rates and still longer lives.

Figure 6.

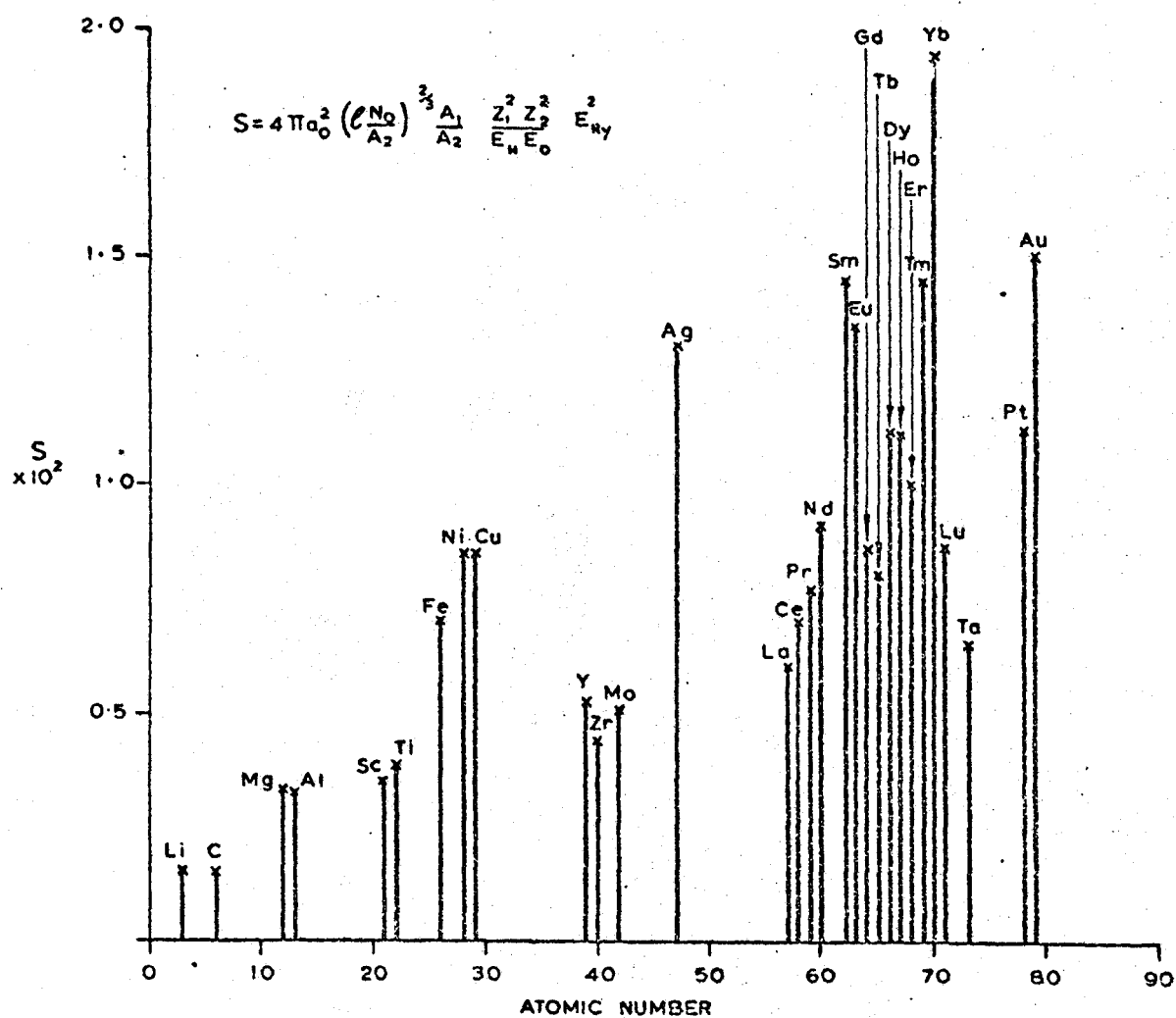


FIGURE 6. Calculated Sputtering Coefficients.

REFERENCES

1. Coon, J.H., Fast Neutron Physics, Eds. Marion & Fowler, Interscience N.Y. (1960) 694.
2. Gibbons D., Oliver G., "Applications of the Neutron Generator in Radioactivation Analysis", A.E.R.E. Report R4576 (1964)
3. Coon, J.H., Fast Neutron Physics, Eds. Marion & Fowler, Interscience N.Y., (1960) 699.
4. Bounden, J.E., Lomer, P.D., Wood, J.D.L.H., Nuclear Instruments & Methods (to be published).
5. Bulgakov, Yu. V., Zh.Tekh.Fiz. 33 (1963) 500. Translation Soviet Physics - Technical Physics 8 (1963) 369.
6. Habermann, C.E., Daane, A.H.J. of Chem.Phys., 41 (1964) 2818 - 2827.
7. Metals Reference Book, Vol. 2. (Butterworths 1955 - 575)

Monsieur WINAND - PRESIDENT

Merci Monsieur LOMER. Une autre communication avant d'ouvrir la discussion sur le sputtering. Je vais demander à Monsieur REIFENSCHWEILER de bien vouloir venir au pupitre.

Monsieur REIFENSCHWEILER

In diesem Beitrag sollen einige vorläufige Ergebnisse von Messungen der Zerstäubungsrate von Titantargets durch langzeitiges Betreiben (bis zu etwa 7500 Stunden) von abgeschmolzenen Neutronenröhren behandelt werden.

Während der letzten Arbeitstagung über Beschleunigertargets, bestimmt zur Herstellung von Neutronen, die im letzten Jahre in Lüttich abgehalten wurde, behandelten wir die Anwendung von Tritiumtargets in abgeschmolzenen Neutronenröhren⁽¹⁾. Nachdem dabei zunächst die Erfahrungen mit konventionellen Titan-Tritium- und Zirkon-Tritium-Targets diskutiert worden waren, wurde ein zuerst in unserem Laboratorium angewendetes selbst-beifüllendes Target⁽²⁾ besprochen. Bei diesem selbstbeifüllenden Target wird ein Gemisch von Deuterium- und Tritium-Ionen in eine dünne Schicht eines wasserstoffabsorbierenden Metalls eingeschossen, die auf eine Unterlage von Metall mit sehr kleiner Wasserstoffdiffusion angebracht ist. Wir verwendeten bis jetzt eine dünne Titanschicht auf Silber. Da in einem solchen Targetsystem der Gehalt an Deuterium-Tritium im Target nach Erreichen der Sättigung konstant bleibt, ist die Lebensdauer dieser Targets nicht mehr durch das Austreiben des Tritiums aus dem Target beschränkt, wie dies bei konventionellen Targets der Fall ist.

Bei Lebensdauerexperimenten, die unter Verwendung dieses Targets ausgeführt wurden, wurden unsere Neutronenröhren bis zu nahezu 8000 Stunden betrieben, ohne dass in dieser Zeit die Neutronenausbeute abnahm. Die Beschleunigungsspannung war dabei 125 KV, der gemittelte auf das Target fallende Ionenstrom etwa $100\ \mu\text{A}$ und die Neutronenausbeute 1 bis $2,5 \times 10^8$ Neutronen pro Sekunde. Da eine Lebensdauer von über 1000 Stunden für abgeschmolzene Röhren im allgemeinen als genügend angesehen werden kann, war das Problem der Lebensdauer für diese Röhren, die eine Ausbeute von einigen 10^8 bis zu etwa 10^9 Neutronen pro Sekunde liefern können, gelöst.

Nun verlangen jedoch einige interessante Anwendungen von mit der $T(d,n)$ -Reaktion arbeitenden Neutronenquellen nach höheren Neutronenausbeuten. So gibt es wichtige Anwendungen

dieser Quellen in der Aktivierungsanalyse, wobei man Ausbeuten von 10^{10} Neutronen pro Sekunde oder lieber noch mehr wünscht. Ausserdem können Quellen von etwa 10^{12} Neutronen pro Sekunde interessante Vorteile für die Strahlentherapie bösartiger Geschwülste bieten, worauf, soweit mir bekannt ist, zuerst von Lomer und Greene⁽³⁾ hingewiesen worden ist, und worüber uns heute morgen Herr Broerse berichtet hat.

In der letzten Zeit wurde an mehreren Stellen an der Realisation von abgeschmolzenen Neutronenröhren mit Ausbeuten von mindestens 10^{10} Neutronen pro Sekunde gearbeitet. Von Bounden, Lomer und Wood⁽⁴⁾ wurde eine Neutronenröhre beschrieben, bei der der Ionenstrahl aus einer HF-Entladung in einem Schritt extrahiert und auf über 100 kV beschleunigt wird. Unabhängig davon wurde in unserem Laboratorium eine ähnliche Methode zur Erzeugung eines Ionenstrahls von einigen Milliampère bei einer Extraktions- und gleichzeitig Beschleunigungsspannung von über 100 kV ausgearbeitet, womit ebenfalls mehr als 10^{10} Neutronen pro Sekunde erzeugt werden können (5). Interessant dürfte in diesem Zusammenhang sein, dass das Problem der Extraktion eines fokussierten Ionenbündels mit einer Spannung von über 100 kV von Bounden, Lomer und Wood und von uns auf grundsätzlich verschiedene Weise gelöst wurde.⁽⁶⁾ Ausser diesen beiden Röhren mit speziellen HF-Ionenquellen wurde in unserem Laboratorium eine mit einer Penningionenquelle arbeitende abgeschmolzene Neutronenröhre für eine Ausbeute von mindestens 10^{10} Neutronen pro Sekunde realisiert, wie dies in einem anderen Zusammenhang schon kurz mitgeteilt wurde⁽⁷⁾.

Bei derartig hohen Neutronenausbeuten bzw. Targetströmen tritt nun ein neuer, die Lebensdauer des Targets beschränkender Faktor in Erscheinung, nämlich die Zerstäubung des Metalls, welches das Tritium-Deuterium-Gemisch absorbiert,

durch das Ionenbombardement. Die Kenntnis der Stärke dieser Metallzerstäubung ist deshalb von besonderer Bedeutung.

Eine einfache Möglichkeit der Bestimmung der Zerstäubungsrate von Titantargets geben uns die Neutronenröhren, mit denen wir die oben schon erwähnten Lebensdauerexperimente durchgeführt haben. Hierzu wurde das auf den Elektrodenoberflächen in der Umgebung des Targets niedergeschlagene Titan chemisch analytisch bestimmt.

Abbildung 1 zeigt der Vollständigkeit halber nochmals die Schnittzeichnung der abgeschmolzenen Neutronenröhre, mit der die Lebensdauerexperimente durchgeführt wurden. Die in einer Pennig-Ionenquelle erzeugten Ionen, 50% Tritonen und 50% Deuteronen, werden in einem einstufigen Beschleunigungssystem auf 125 kV beschleunigt. Sie fallen auf eine auf einer Silberunterlage aufgedampfte Titanschicht von einigen μ Dicke. Der Gasdruck wird während des Betriebs mit einem besonderen Druckregler ⁽⁸⁾ konstant gehalten. Die Neutronenröhre befindet sich im allgemeinen in einer zylinderförmigen Metallumhüllung (Fig.2), wobei die negative Beschleunigungsspannung für das Target durch ein Hochspannungskabel zugeführt wird. Hierdurch ist ein einfacher Betrieb der Röhre möglich, wobei eine automatische Regelung des Gasdruckes ohne weiteres einen Tag- und Nachtbetrieb ohne Beaufsichtigung ermöglicht. Nach den Lebensdauerexperimenten wurde der grösste Teil des Tritiums durch Erhitzen der Röhre auf hohe Temperaturen (900 - 1000°C) ausgetrieben. Danach wurde das an der Wand des Targettopfes (in Abb. 1 unter dem eigentlichen Target) und das innerhalb der Beschleunigungselektrode niedergeschlagene Titan chemisch analytisch bestimmt.

Die Tabelle gibt die Resultate von 4 Lebensdauerexperimenten. Die erste Spalte gibt die Betriebsart (kontinuierlich oder gepulst), die 2. Spalte den Ionenstrom bzw. mittleren Ionenstrom I (nach Abzug der Sekundärelektronen), die

3. Spalte die Betriebsdauer T in Stunden und die 4. Spalte Strom x Betriebsdauer in mA x h., in der 5. Spalte ist die Menge M_{Ti} auf dem ursprünglichen Target, in der 6. Spalte die Menge des zerstobenen Titan m_{Ti} eingetragen, in der 7. Spalte die pro mA x h durch Zerstäubung abgetragene Titanmenge und in der letzten Spalte schliesslich der Zerstäubungskoeffizient (zerstobene Titan-Atome pro einfallendes Ion). Die Beschleunigungsspannung war bei allen Messungen 125 KV, die Targetoberfläche betrug etwa $7 / \text{cm}^2$. Der absolute Fehler der Titanbestimmung war kleiner als $10 / ^\circ$

Betriebs- art	I μA	T h	I x T mA x h	M_{Ti} target mg	m_{Ti} zerstoben mg	$m_{Ti} / I \times t$ mg / mA x h	$\frac{\text{Ti-Atom}}{\text{Ion}}$
kontin.	75	474	35	9,0	0,5	14	$7,8 \times 10^{-3}$
"	150	1300	195	21,3	3,2	16,4	9×10^{-3}
"	75	7380	553	23,0	1,8	3,3	$1,8 \times 10^{-3}$
gepulst	100	60	381	19,5	1,4	3,7	2×10^{-3}
Pulslänge 100 ms 1 pps	50	7500					

Wie man sieht, besteht noch eine grosse Diskrepanz zwischen den ersten beiden Messungen mit etwa 500 und 1300 Stunden Betriebsdauer und den beiden letzten Messungen mit je etwa 7500 Stunden. Bei den ersten beiden Messungen ist der Zerstäubungskoeffizient etwa gleich gross wie der von Herrn LOMER für Erbium gefundene Koeffizient, während er bei den letzten beiden Messungen etwa

Fig. 1 & 2

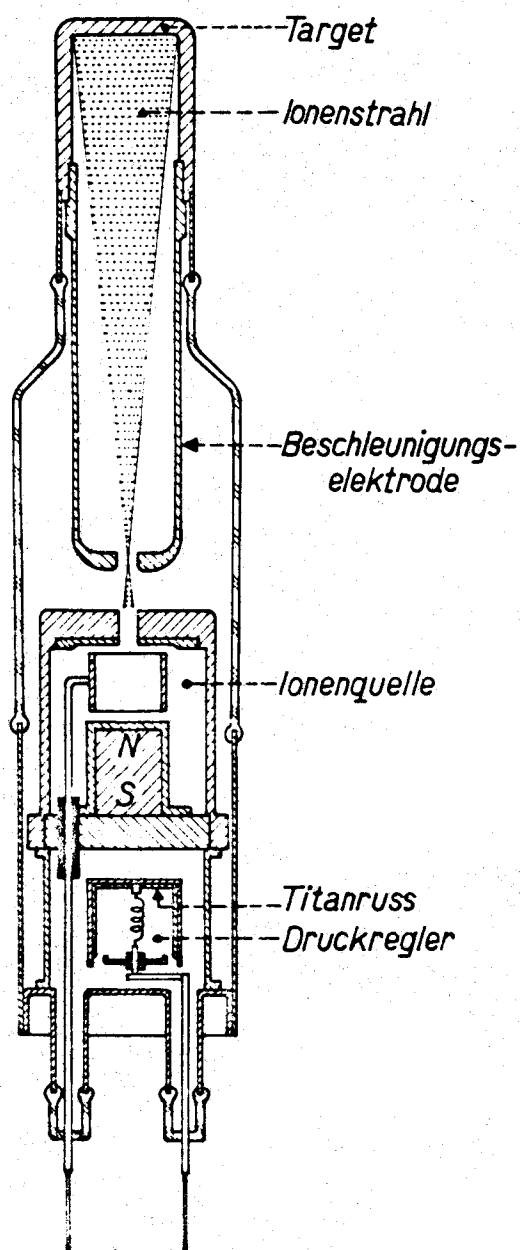


FIG. 1

SCHNITTZEICHNUNG
DER NEUTRONENRÖHRE

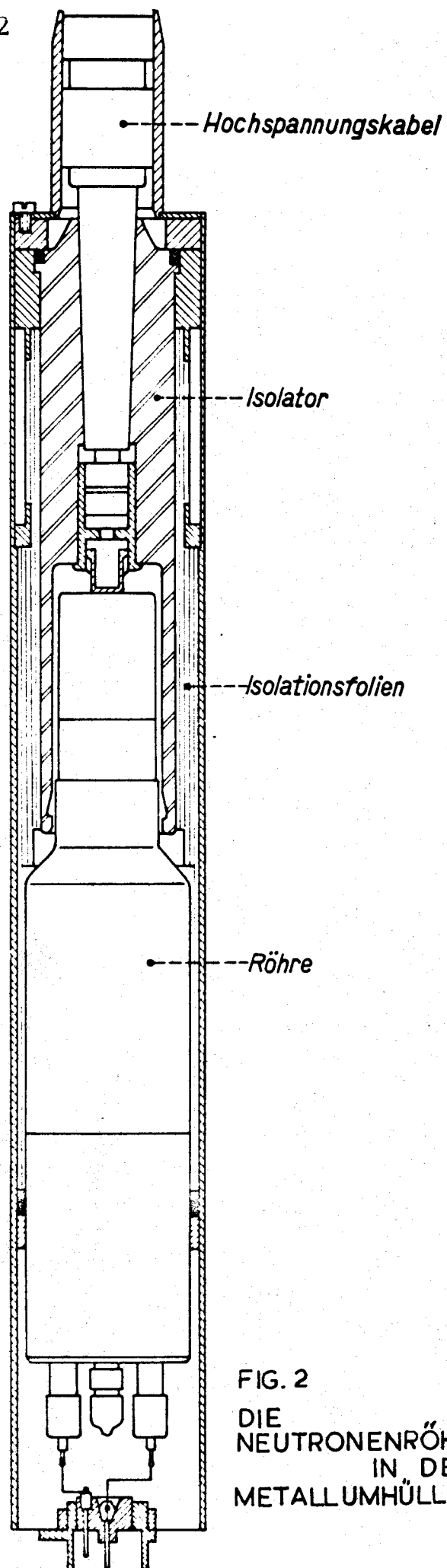


FIG. 2
DIE
NEUTRONENRÖHRE
IN DER
METALLUMHÜLLUNG

4 mal kleiner ist. Dies ist gerade der von Herrn LOMER nach theoretischen Erwägungen für Titan erwartete Wert. Bei diesem Vergleich muss man jedoch beachten, dass in unserem Experiment das Target vorwiegend mit 125 keV - Molekülionen bombardiert wurde, während der Ionenstrahl bei dem Experiment von Herrn Lomer wohl zum grössten Teil aus Atomionen von 110 KeV bestand.

Diese Ergebnisse zeigen weiterhin noch einmal deutlich den grossen Fortschritt, der mit der Methode der selbstbeifüllenden Targets in den in unserem Laboratorium zuerst ausgearbeitenden abgeschmolzenen Neutronenröhren ^(9,10) erzielt worden ist. Diese Neutronenröhren wurden bis jetzt bis zu über 500 mA x h betrieben, ohne dass eine Abnahme der Neutronenausbeute zu beobachten war, und die gefundenen Zerstäubungsraten lassen noch wesentlich längere Lebensdauern (in mA x h) bei konstanter Neutronenausbeute erwarten. Zum Vergleich hierzu muss man sich vergegenwärtigen, dass man bei Anwendung der konventionellen Targettechnik, wie sie in an der Pumpe arbeitenden Beschleunigern bis jetzt ausschliesslich angewendet wird, im allgemeinen schon nach 1 mA x h eine starke Abnahme der Neutronenausbeute beobachtet. Natürlich müssen zur vollen Ausnützung der Vorteile, die die Technik der selbstbeifüllenden Targets bietet, die übrigen besonderen Probleme von abgeschmolzenen Neutronenröhren ⁽¹¹⁾, vor allem nun noch Erzeugung und Beschleunigung hoher Ionenströme beim gleichen Gasdruck, gelöst werden. Die bisherigen Ergebnisse auf diesem Gebiet lassen jedoch erwarten, dass in Zukunft abgeschmolzene Neutronenröhren mit Ausbeuten von 10^{11} Neutronen/s oder noch mehr mit hohen Lebensdauern bei konstanter Ausbeute hergestellt werden können. Das Auffinden von wasserstoffabsorbierenden Materialien mit geringen Zerstäubungsraten bei sonstigen günstigen Eigenschaften ist in diesem Zusammenhang natürlich von besonderer Bedeutung, worauf schon von Herrn LOMER hingewiesen worden ist.

Die Bestimmung von Zerstäubungsraten werden bei passender Gelegenheit, vor allem wenn Lebensdauerexperimente mit stärkeren Neutronenröhren durchgeführt worden sind, fortgesetzt.

Schrifttum

1. O.Reifenschweiler Proc. Meeting Liège, Febr. 17 - 18, 1964, EUR 1815. e, S. 25-34
2. O. Reifenschweiler, Nucleonics 18, Nr.12, 69-71, 1960, siehe auch Philips Res.Repts. 16, 401 - 418, 1961 und Philips Techn. Rev. 23, 325 - 337, 1961/62.
3. P.D. Lomer and D.Greene, Nature 198, 200, 1963, siehe auch J.J. Broerse und G.W. Barendsen, Proc. IAEA Symp.Biol. Effects Neutron Proton Irradiation, 1,309, 1964 und Nature 206, 208, 1965.
4. J.E.Boundon, P.D. Lomer and J.D.L.H. Wood, Nuclear Instruments and Methods 33, 283, 1965.
5. O. Reifenschweiler und K.R.Fröhner, Nuclear Instruments and Methods 30, 298, 1964.
6. Siehe hierzu Z. Instr. 73, 203, 1965
7. C.W. Elenga and O.Reifenschweiler, IAEA Symposium on Pulsed Neutron Research, Karlsruhe May 1965, Session VI, Paper SM-62/9.
8. O. Reifenschweiler, Rev. Sci. Instr. 35, 456, 1964
9. FM Penning und J.H.A. Moubis, Physica 4, 1190-1199, 1937.
10. O. Reifenschweiler und A.C. van Dorsten, Phys. Verh.(Mosbach) 8, 163, 1957.
11. Siehe z.B. Philips Res. Repts. 16, 403, 1961

Monsieur WINAND - PRESIDENT

Merci Monsieur Reifenschweiler, la discussion est ouverte sur les 2 communications précédentes.

Monsieur FABIAN

Ich möchte versuchen, die wellenförmige Neutronenausbeute von Herrn LOMER zu erklären.

Wenn die Titanschicht mit Unterbrechung gedampft worden ist, könnten Oxydschichten eingelagert sein. Angenommen der Ionenstrahl gräbt sich durch Sputtering in die Schicht ein, so ergibt sich dann, wenn die Deuteronen mit ca. 110 keV in die Oxydschicht gelangen, eine Verminderung der Ausbeute. Die Ursache einer Oxydierung kann auch das Umschalten von einem auf das andere Schiffchen sein, weil das Schiffchen beim Aufheizen gast. Durch das Heisswerden von Elektrodendichtungen kann das Vakuum auch verschlechtert werden.

Die Diskrepanz, die sich beim Vergleich von Sputterings ergibt, ist erklärbar durch die Struktur der Schichten. Eine poröse Schicht wird wesentlich leichter zerstäubt als eine kompakte Schicht. Die Qualität der Schicht hängt wieder vom Dampfen ab, vom Vakuum, von der Verdampfungsgeschwindigkeit, von der Temperatur der Unterlage usw. Danke schön.

Madame BREYNAT

Je voudrais demander à Monsieur LOMER comment il a mesuré le taux de sputtering de ses cibles ?

Monsieur LOMER

The sputtering rate was measured from the autoradiograph pictures given in the paper, from these the distribution of ion current was obtained and knowing the thickness of the film, then the time taken for that thickness to be sputtered away at any point on the target surface could be

determined and hence the sputtering coefficient could be calculated. I would like to make one or two comments on Dr. REIFEN-SCHWEILERS'S measurements these are particularly interesting as they go somewhere towards confirming the theoretical aspect of the work they do show sputtering rates which are considerably lower than those we have obtained with erbium. If we hope that this is good experimental confirmation it increases our optimism with regard to this use of scandium. If we take the figures for scandium then it means with a five cm² target and a 1 milliamp. ion beam spread uniformly over that target which we'll say for the sake of argument is, 25 milligrammes per cm² in thickness that we have a target life of a thousand hours. From this we can determine the life at higher neutron output ion beam currents and our present work is aimed at producing a level of 10^{11} neutrons per second and with this we would hope with these figures to obtain let's say initially a life of one hundred hours but eventually a life well in excess of this. Here we are, of course, talking only about the target problems and there are, of course, all these other problems associated with producing the high ion beam currents in a sealed off neutron tube. However, as far as 10^{11} is concerned, we have produced ion currents of twenty milli-amp. which will be more than adequate for that level of neutrons.

Monsieur MUNZER

Ich habe eine Frage an Monsieur LOMER. Sie haben Autoradiographien nach verschieden langen Betriebszeiten aufgenommen. War die Zerstäubungsrate konstant für verschieden lange Betriebsdauern oder war die Zerstäubungsrate eine Funktion der Betriebsdauer? Man könnte annehmen, dass durch Strukturänderungen, hervorgerufen durch das Bombardement mit Deuteronen, die Zerstäubungsrate sich ändert.

Monsieur LOMER

One of the advantages of this system is that it gives plenty of time to think of an answer by the time one is ready to give it. I don't think really we have done enough work to even start to look at this sort of problem the results I've given are quite a small sample and don't in any way represent an exhaustive scientific study of sputtering, I think this still has to be done.

Monsieur GRAY

We have had a long discussion from users of sealed neutron tubes on methods of extending the life of the tubes in particular by using a mixed beam. Users who have spoken before about extending target life in pumped tubes have concentrated on increasing target areas. It is however practicable to use mixed beam techniques in continuously pumped tubes, and under these conditions the work on sputtering which has been described is of considerable interest since ultimately it is possible to visualize a continuously pumped tube which merely has to be fed with one mixed gas supply and will run until target sputtering requires a change of the target foil. I wonder whether any other users of continuously pumped tubes would like to comment on this.

Monsieur WINAND - PRESIDENT

Personne ne désire répondre à la question qui vient d'être posée ? N'y a-t-il plus de question sur la pulvérisation des cibles ? Nous pouvons donc passer au point 12 A5 - Contamination de la surface des cibles (expérience des différents types de pompes - pompes à diffusion d'huile, pompes à diffusion

de mercure - pompes ioniques - Utilisations des pièges et baffles.)

Monsieur RETHMEIER

In two experiments, performed in our laboratory, it turned out that in this contamination layer neutrons are produced by the (d, d) reaction.

In the first experiment (L.W.Put, thesis on inelastic scattering of d-d neutrons) a He^3 -n coincidence technique has been used. The thickness of the deuteriated titanium target was 70 keV for 300 keV deuterons, the energy spread of the detected He^3 particles was about 30 keV.

If a proper choice of the emission angles of neutron and He^3 has been made the surface of the target can be scanned. An unexpected behaviour of the counting rates of He^3 particles, neutrons and He^3 -n coincidences was found, which strongly indicated the production of a fair amount of neutrons in the contamination layer.

To study this effect with greater accuracy P.Van HALL (private communication) measured the spectrum of protons, originating from deuteron bombardment (≈ 300 keV) of thin Ti-d Targets and drive-in targets. A solid state detector was used, mounted inside a scattering chamber. He was able to identify protons from the d(d,t)p reaction with deuterons in the Ti layer, with "drive-in" deuterons, and from the $\text{d(c}^{12}, \text{c}^{13}) \text{p}$ reaction. After some time in all spectra a new peak grew, and it has been proven to be due to protons from the d(d,t)He^8 reaction, occurring in a growing layer of contamination.

I wonder if anyone has any comment on this.

Monsieur WINAND - PRESIDENT

D'autres commentaires ?

Monsieur MORGAN

What was the energy of your proton group ?

Monsieur RETHMEIER

The protons were detected at an angle of about 30° , so their energy will have been about 2.5 Mev.

Monsieur MORGAN

One form of contamination which normally will occur in tritium targets particularly if they are old is the helium 3 build up from the decay of the tritium. However, this produces a very high energetic group of protons through the helium 3 (d,p) reaction and you should be able to see protons of about 14 MeV at 90° . I really do not see where you get the new group of protons.

Monsieur RETHMEIER

The protons did not come from a He^3 reaction, but from the d(d,p)t , which will give a negligible amount of tritium and hence of He^3 in the target. Now all this work was done under certain conditions and these conditions are not necessarily the same as other people. Our current density on the target was fairly small something of the order of $10 \mu\text{A per cm}^2$ the vacuum in the system was quite good and the targets were kept very clean was no deposit of the surface. We checked this with threshold measurements before and after the experiment so that in general when you do any particular experiment you should take note of the particular conditions and you should really measure the tritium distribution at the same time so for anybody who is interested

in say cross sections very good accuracy and if they want to quote over all errors something of the order of three percent then they must really know their tritium distribution in the target.

Monsieur WINAND - PRESIDENT

Le point suivant I2 A6 COMPOSITION DU FAISCEAU a déjà été touché incidemment, je crois que maintenant nous pouvons y consacrer un bon moment :

Composition du faisceau en ions des diverses espèces - ions atomiques, ions moléculaires - cas où il a été fait des analyses du faisceau : le résultat de ces analyses et les commentaires. La plupart des machines utilisées pour l'analyse par activation, qui sont, soit des tubes scellés soit des petites machines, ne sont pas en général équipées pour travailler avec un faisceau analysé. D'un autre côté, peut-être que l'utilisation de sources d'un même type, comme des sources à radiofréquence par exemple, peut donner, dans les mêmes conditions apparentes, des rendements en ions atomiques et en ions moléculaires qui varient très fortement d'une source à l'autre selon les caractéristiques internes de la source-. Nous avons déjà eu un certain nombre d'expériences assez tristes dans ce domaine, mais enfin peut-être y a-t-il des généralités à dire là-dessus ou des détails d'expériences personnelles ?

Monsieur MORGAN

I shall make one comment about the nature of beams in radiofrequency ion sources and duoplasmatrons. We have performed a magnetic analysis of the beams, in a pumped accelerator, from the radio frequency ion source. Initially when the source is clean it is possible to get 83 to 87% atomic beam. As the source gets dirty this ratio will generally decrease until the atomic to

molecular ratio will become approximately fifty-fifty. One thing which causes this is the sputtering of the aluminium canal. In order to alleviate this problem, a radio frequency ion source has been developed whose base has a beryllium canal. At the present time it appears that the life time of this source for producing high atomic beams is much better than the aluminium canal type. In duoplasmatron sources the largest ratio of atomic to molecular beams we have been able to produce is of the order of 60% atomic ions.

Madame BREYNAT

Nous avons un accélérateur, type SAMES, fonctionnant en régime pulsé (la pulsation du faisceau se fait par pulsation de l'oscillateur Haute Fréquence qui crée le plasma d'ions dans l'ampoule de source) et équipé d'une déflexion magnétique du faisceau accéléré.

Lorsque la source est neuve, nous pouvons obtenir jusqu'à 80% et même 90% d'ions monoatomiques. En faisant varier les réglages, tels que pression d'hydrogène dans l'ampoule de source ou intensité du champ magnétique de concentration du plasma, nous pouvons faire varier ce pourcentage de 80% à 20% très aisément.

Lorsque la même ampoule de source a fonctionné plusieurs centaines d'heures, ce pourcentage d'ions monoatomiques diminue très nettement pour les mêmes réglages et il devient difficile de le maintenir à cette valeur. Parallèlement, nous constatons une usure du canal d'extraction sans pouvoir dire si elle est responsable de la diminution de ce pourcentage.

Monsieur REIFENSCHWEILER

Wir haben gute Erfahrungen mit Extraktionssonden aus Molybdän gewonnen. Z.B. konnten wir bei einer HF-Ionenquelle,

die mit einer Molybdän-Extraktionssonde ausgerüstet war, und die einen Ionenstrom von 10 mA lieferte, (x) während einer Betriebszeit von 100 Stunden keine wesentliche Abnahme der Atomionenausbeute feststellen. Sie betrug zwischen 80 und 90%.

Monsieur HUNT

Our experience with R.F. ion sources has been very similar to that of the previous speakers. The initial monoatomic percentage is about 80% deteriorating with time to about 50% at which point the source is usually cleaned or changed. The time for this deterioration depends on many factors, for example, the type of glass used for the envelope, the purity of the gas and the metal used for the canal. Under favourable conditions with an aluminium canal high monoatomic percentages have been maintained for several hundred hours.

We have discussed typical monoatomic percentages for R.F. type ion sources but have had only the best figure of 60% quoted for duoplasmatron sources. I wonder if anyone can give typical operating figures for duoplasmatron sources and any information on the deterioration in monoatomic percentage with time.

Monsieur WINAND - PRESIDENT

Merci - Quelqu'un pourrait il reprendre cette question sur le rendement des sources " duoplasmatron ".

Monsieur MORGAN

Our personal experience at present is fairly limited as far as total operation time with a duoplasmatron is concerned. Several groups at Los Alamos Scientific Laboratory and Oak Ridge National Laboratory in the United States have typically

been getting the order of 500 hours operating time. It seems that the atomic ratio in the duoplasmatron is most critical and depends on the magnetic field around the source and of course the gas pressure, but not as critical on the gas pressure as on the RF sources.

I think one can expect a life of about four or five hundred hours in the duoplasmatron with a 60°/. atomic beam.

Monsieur STEELE

I don't worry about the duoplasmatron source. I had a conversation with Dr. GIBBONS at Oak Ridge National Laboratory and he tells me that the life of this Duoplasmatron source is a function of the ability of the technician to put the oxide film on the wire. It is a real art form. Some of these, he says, will last longer than even the five hundred hour operation which they demonstrated. If someone is interested you could contact Dr. GIBBONS at the Oak Ridge National Laboratory-High Voltage Laboratory at Oak Ridge.

Monsieur WINAND - PRESIDENT

Merci Monsieur STEELE de votre invitation à reprendre contact éventuellement pour ces détails.

Monsieur SCHMIDT

Herr Dr. EYRICH benutzt in Karlsruhe eine Duoplasmatronionenquelle für einen gepulsten Neutronengenerator (Bericht KFK 304). Der Bogenstrom liegt im Impulsbetrieb zwischen 20 und 40 A bei Impulsdauern bis zu 40 μ sec. Bei so hohen Bogenströmen bekommt man auch beim Duoplasmatron einen hohen Atomionenanteil; wir haben mit einer

Ionenlaufzeitmethode bei sehr kurzen Impulsen 70 - 80% gemessen. Die Lebensdauer der Kathode (Oxydkathode) beträgt bei diesem Beschleuniger ca. 200 h.

In Bezug auf die andere von uns entwickelte Neutronenquelle mit gepulster Hochfrequenzionenquelle und gepulster Beschleunigungsspannung, die 15 A Ionenstrom liefert, möchte ich zur Frage der Höhe des Atomionenanteils folgendes bemerken :

In Analogie zur konventionellen Hochfrequenzionenquelle dient auch uns die Entladungsfarbe als Anhalt für den Dissoziationsgrad und damit den Atomionenanteil des Strahles.

Die Entladungsfarbe des Hochfrequenzplasmas in der Entladungskammer dieser Röhre ist bei kleinen Hochfrequenzleistungen (bis ca. 20 kW) ein blasses rosa-blau, da bei dieser Leistung keine vollständige Dissoziation des Entladungsgases während der Impulsdauer von 15 μ sec erfolgt. Auch tragen die der Entladung zugewandten Metallflächen der Anode, der Feldelektrode und des Targets zu Rekombination der Moleküle bei. (1) Erhöht man jedoch die Entladungsleistung über 100 kW, so geht die Entladungsfarbe sehr rasch in das intensive rot über, das wir von Hochfrequenzionenquellen mit sehr hohem Atomionenanteil kennen. Bei der im Betrieb verwendeten Leistung von 200 kW spielen infolge des hohen Ionisationsgrades der Entladung von ca. 50% im Zentrum und ca. 10% in der Nähe der Wand schon Stufenprozesse eine merkbare Rolle, durch die ein hoher Dissoziationsgrad und damit Atomionenanteil im Strahl sichergestellt wird. (1) Siehe Abb.2 auf Seite 102.

Monsieur HOLLISTER

I have a comment concerning both beam composition and contamination of the target and tube. Although the target life time with an atomic beam is certainly expected to be longer than with a molecular beam, this potential life is quite often not realized in practice. It is well known

that a very great improvement in target life time is achieved by going from a diffusion pump to an ion pump. However another point, that has not received a great deal of attention is the tube construction and processing itself. Complete elimination of organic seals, not only in the O ring, but also with epoxy and vinyl joints, allows the tube to be processed to a much greater degree of cleanliness. An example of this is that we found tubes processed in this manner using a pig ion source having a largely molecular ion beam give target lives quite comparable and even higher than usually achieved with the atomic beam. We have realized target half lives of the order of 1 milliamp. hour per cm² in this manner with a target molecular beam.

Monsieur WINAND - PRESIDENT

Point I2 A7 - Nature du Faisceau (pulsé et non pulsé)

Pas de questions ?

S'il n'y a plus de questions, nous vous proposons d'arrêter la session pour aujourd'hui et de reprendre demain matin à 9 heures -.

Fin de la journée du 21 juin.

PROGRAMME DE TRAVAIL

MARDI - 22 Juin 1965Séance du matin.Début : 9 heures.Président de séance :Mr. J. LAVERLOCHEREAdjoints : Mrs. GERBIER et GODAR

- I. 2A 8) Consommation en gaz pour l'alimentation de la source (débit de routine).
Dispositifs d'introduction et types de sources d'ions.
- 9) Influence des fluctuations du courant de faisceau ou de la haute tension sur les performances de ces cibles.
- 10) Concentration et répartition du tritium dans la cible.
Communication de Mr. P. FIELDHOUSE, D.S. MATHER and E.R.CULLIFORD, présentée par Mr. PERKIN.
- Atomic Weapons Research Establishment - Aldermaston.
" Some investigations of tritium targets and the problem of calculating the neutron yield of the $T(d,n)He^4$ reaction " .
- 11) a) Dilution du tritium de la cible par le deutérium du faisceau.
b) Contribution de la réaction d-d par rapport à la réaction d-t en fonction du temps d'irradiation de la cible.
- 12) Influence du support de la cible.
- 13) Cibles de grande surface.
Communication de Mr. FLEISCHER - Cyclotron Corporation - Berkeley
" A 14 MeV neutron source capable of delivering a 1000 Rad dose uniformly over a 6 x 6 foot area "

- I.2.B. Précautions à prendre lors de la manipulation des cibles.
- C. Conservation des cibles pendant la période de non utilisation.
- D. Problème de la contamination en tritium de l'accélérateur, des pompes, de l'endroit où s'effectue l'irradiation.
- E. Mesure du flux de neutrons émis :
- 1) Détecteurs à neutrons,
 - 2) Pastilles métalliques ou autres.
 - 3) Activation de l'eau de refroidissement de la cible.
 - 4) Méthode de la particule associée.
- F. Mesure de l'énergie des neutrons émis.
- G. Dispositifs de modération du flux de neutrons rapides.
- H. Méthodes pratiques pour mesurer avant emploi la contenance en tritium de la cible.

II. Autres cibles de Tritium.

1. Nouvelles cibles métalliques.

Communication de Mr. DUBUS, Centre Nucléaire de Grenoble :

" Quelques expériences sur les cibles tritiées utilisant des terres rares."

Communication de Mr. MORGAN, Texas Nuclear Corporation :

" Tritiated targets of Sc, Ti, Zr, Er, Y and U ".

2. Nouvelles cibles non métalliques.

Communication de Mr. GUILLAUME, Université de Liège :

" Etat actuel des recherches effectuées à l'Université de Liège sur la production de nouvelles cibles génératrices de neutrons."

Fin 12.30 h.

PROGRAMME DE TRAVAIL

MARDI 22 Juin 1965Séance de l'après-midiDébut 14 hrsPrésident : Monsieur GERBIERAdjoints : Mrs. WINAND et GODARObjet des discussionsII. Autres cibles de Tritium

1. Nouvelles cibles de Tritium
2. Autres cibles non - métalliques
3. (Cibles gazeuses)

III. Cibles de deutérium

1. Types et méthodes de préparation
2. Conditions d'emploi
3. Auto-cibles (influence de la nature de la surface bombardée)
4. Rendements.

IV. Cibles de béryllium

1. Pour réactions au moyen de particules chargées
(d,n), (He⁴,n) (He³,n)
2. Pour réactions γ - n
3. Convertisseurs d'électrons en rayonnement de freinage pour réactions γ - n
4. Rendements

V. Cibles de lithium

1. Types et méthodes de préparation
2. Conditions d'emploi
3. Rendements

Communication de M.E.G.PILPUCH et H.W.NEWSO
- Duke University, Durham -
" High Resolution Neutron Spectroscopy".

VI. Cibles de Vanadium

1. Types et méthodes de préparation
2. Conditions d'emploi
3. Rendements

Communication de M.J.H. GIBBONS and R.C. MACKLIN

Oak Ridge National Laboratory - Oak Ridge -

" ^{51}V (p,n) ^{51}Cr Cross section from threshold to 2.25 MeV."

VII. Cibles de Scandium

1. Types et méthodes de préparation
2. Conditions d'emploi
3. Rendements

VIII. Cibles de Cuivre

1. Types et méthodes de préparation
2. Conditions d'emploi
3. Rendements

IX. Cibles d'Azote

1. Types et méthodes de préparation
2. Conditions d'emploi
3. Rendements

X. Cibles d'Oxygène

1. Types et méthodes de préparation
2. Conditions d'emploi
3. Rendements

XI. Cibles de Carbone

1. Types et méthodes de préparation
2. Conditions d'emploi
3. Rendements

XII. Cibles d'Uranium

Pour réactions (γ , n)

1. Types et méthodes de préparation
2. Conditions d'emploi
3. Rendements

XIII. Cibles d'Argon

1. Types et méthodes de préparation
2. Conditions d'emploi
3. Rendements

x x x

Discussions portant sur l'ensemble du programme des deux journées.

Fin 18.30 h

Monsieur LAVERLOCHERE - PRESIDENT

Mesdames, Messieurs,

Nous allons reprendre aujourd'hui les discussions au point I.2.A.10) du programme relatif à la Concentration et la Distribution du tritium dans la cible. Mr. PERKIN va tout d'abord nous présenter la communications, intitulée " Some investigations of tritium targets and the problem of calculating the neutron yield of the T (d,n) He⁴ reaction " de P. Fieldhouse, D.S. Mather et E.R. Culliford.

Monsieur PERKIN

The associated particle method of monitoring the absolute 14 MeV neutron yield of the T(d,n)He⁴ reaction has been discussed fully in the literature ¹⁻³).

In calculating the total neutron yield per detected particle (or per incident deuteron) the assumption is usually made ^{4,5}) that the tritium is uniformly distributed throughout the depth of the target. Some work reported by Gunnensen and James ⁶) presents evidence to the contrary and shows that in the case of a typical Ti T target there is invariably a surface layer depleted in tritium and a fall off in density towards the back of the titanium layer. Similar results for thin Zr T and Ti T targets have been obtained by Macklin and Gibbons ⁷).

The quantity of primary importance in calculating the neutron yield is not simply the tritium density distribution, $n(x)$ but rather $f (n(x), \sigma_{cm} (\theta, E), dE/dx)$ i.e. a function of the tritium density weighted with the centre-of-mass differential cross section, $\sigma_{cm} (\theta, E)$ and the

deuteron rate of ionization loss dE/dX . A further term converting solid angles from the centre-of-mass to the laboratory system enters into the calculation but this is known precisely from the kinematics of the reaction⁸⁾. The chief source of error in evaluating the yield function f is the lack of reliable experimental ionization loss data, in particular below 100 keV, and uncertainty in the magnitude and shape of the tritium distribution.

A technique has been developed at AWRE, Aldermaston which can be used to give an assessment of the yield function f , throughout the depth of target penetrated by the incident deuteron beam and from this the density distribution $n(x)$ can, if necessary, be unfolded. Alternatively, one can use the technique in a slightly different way to give a more direct indication of $n(x)$ if this is the quantity of major importance rather than the neutron yield. These studies were motivated by the need to produce a 14 MeV neutron flux, known to an accuracy of better than 1%, which could be used to calibrate a Pu^{240} spontaneous fission neutron source⁹⁾ and also an Sb-Be photoneutron source¹⁰⁾.

The principle of the method is to probe the target using a magnetically analysed Van de Graaff deuteron beam and to observe coincidences between the emitted 14 MeV neutrons and associated alpha particles. The angles θ and ϕ between the deuteron beam and the neutron and alpha detectors respectively define the reaction energy of the deuterons and hence define the depth of the point in the target from which the coincident alphas and neutrons are being observed. The rate of observed coincidences is determined by the detector sizes, the beam on target i.e. the number of deuterons incident per sec, the values of dE/dx and $\sigma_{\text{cm}}(\theta, E)$ at the reaction energy E_R and the corresponding tritium density $n(x)$ at depth x .

This depth is given by

$$x = R(E) - R(E_R)$$

where $R(E)$ is the range in the target of deuterons of incident energy E and $R(E_R)$ is the residual range of deuterons of energy E_R .

The first way of applying this technique is to fix both the incident deuteron energy (and therefore $R(E)$) and also the angle of the alpha detector (ϕ) and to vary the angular position of the neutron detector (θ).

(This is usually more easily achievable than to change the angle of the alpha detector). By doing this one is effectively changing the reaction energy E_R and hence $R(E_R)$ and the depth of observation x .

If the detector geometries are appropriate, at each reaction energy defined by θ and ϕ the observed coincidence rate is proportional to

$$\frac{n(x)\Delta E}{J \cdot dE/dx} \sigma_{cm}$$

where ΔE is the energy resolution of the neutron detector and J is the laboratory to centre-of-mass transformation factor of solid angle for the alpha detector. The above expression corresponds to the previously mentioned yield function f , modified by the detector resolution ΔE . Thus, in order to obtain the total neutron yield for the chosen incident deuteron energy, one has simply to correct the measured coincidence rate for ΔE and integrate over all reaction energies (i.e. angles, θ). It is further possible to unfold $n(x)$ as a function of depth.

In the second method of application the neutron and alpha detector angles θ and ϕ are fixed thereby fixing

the reaction energy E_R . By changing the incident deuteron energy one can once again look at reactions taking place at different depths x in the target [$R(E)$ is here being altered rather than $R(E_R)$] but since the reaction energy is fixed, $\sigma_{cm} dE/dx$, J and ΔE are constant and the observed coincidence rate is simply proportional to the value of $n(x)$, the tritium density. Provided, therefore, that the range data for deuterons in the target is available, $n(x)$ can be obtained directly by this method as a function of depth in target.

Figure 1(a) shows the schematic arrangement of the apparatus and figure 1(b) a block diagram of the electronics. In figure 2 and 3 typical distributions are given which illustrate the application of this technique to thick (1 mg/cm^2) and thin ($80 \mu\text{g/cm}^2$) targets of Ti T on Au with loading factors of about 1:1. Other targets of thicknesses ranging from $20 \mu\text{g/cm}^2$ to 2.5 mg/cm^2 on a variety of backings have been studied by this method. Details of these are summarised in Table 1. The distributions for these targets were similar to those shown in figures 2 and 3.

The tritium distributions of figures 2 and 3 are clearly non-uniform. Even after allowing for uncertainties in the deuteron range data and the nominal thickness of the Ti layer, and the fact that the targets were inclined at 45° to the deuteron beam (and would therefore appear about $1 \frac{1}{2}$ times thicker than nominal) there still appears to be some evidence of penetration of the tritium into the backing. However, the thin target distributions cannot be interpreted too literally since the resolution of the neutron detector used for this work was comparable to the target thickness and had the effect of considerably broadening the distributions and displacing the peak into the target. If this technique is to be used for detailed studies of tritium distributions the system recommended should have considerably better resolution and a more precise means of setting up

and measuring the neutron angle than was possible in the work reported here.

The relative total neutron yield per alpha is given in table 2 for several representative deuteron energies and for an alpha detector at three widely spaced angles to the deuteron beam.

The figures have been computed, firstly, on the assumption of a uniform distribution of tritium in the target and, secondly, using the measured distribution for a thick Ti T target shown in figure 2.

Discrepancies between the two sets of figures for assumed uniform and non-uniform distributions vary from less than 1% to more than 2% depending on the angle and energy.

References

1. J. Benveniste and J.Zenger, UCRL Report - 4266 (Jan.1954)
2. J. Benveniste, A.C. Mitchell, C.D.Schrader and J.H.Zenger, Nucl.Inst. and Meth. 7 (1960) 306
3. EURATOM Report - EUR 1815 e.
4. J.D. Seagrave, LAMS Report - 2162 (Jan 1958)
5. L. Ruby and R.B.Crawford, UCRL Report - 10752 (April 1963)
6. E.M. Gunnensen and G.James, Nucl. Inst.and Meth.8 (1960) 173
7. R.L. Macklin and J.H.Gibbons, Phys.Rev.109 (1958) 105 and private communication (1965)
8. L. Blumberg and S.I. Schlesinger, unpublished Los Alamos document AECU 3118.
9. P.Fieldhouse and E.R.Culliford, IAEA Vienna Neutron Dosimetry Vol.2 (1963) 565 and further work to be published.
10. J.L.Perkin, P.H.White, P.Fieldhouse, E.A.Axton, P.Cross and J.C.Robertson, Reactor Sci.Technol.(J.Nucl.Energy Parts A/B (1965) to be published.

Table 1
Details of Targets Investigated

Class	Thickness			Backing	T/Ti (or Er)
	mg/cm ²	ΔE_D (keV) [†]	ED (keV) ^{††}		
Thin Ti T	0.08*	26		Au(0.012 cm)	?
	0.08*	26		Pt(0.012 cm)	?
	0.028	9		Cu(0.025 cm)	1.1 : 1
	0.036	12		Cu(0.025 cm)	1.0 : 1
Semi- Thick Ti T	0.41		100	Au(0.050 cm)	0.8 : 1
	0.52		130	Au(0.050 cm)	0.6 : 1
	0.460.7		100-180	Au(0.050 cm)	?
	0.60		150	Cu(0.025 cm)	1.2 : 1
Thick Ti T	1.0*		270	Au(0.012 cm)	1 : 1
	2.5		900		0.7 : 1
Thick Er T	2,1			Cu(0.050 cm)	1.8 : 1

* The titanium evaporations of the targets carrying an asterisk were prepared at AWRE, Aldermaston and these were subsequently tritiated at RRC Amersham. In all other cases the complete target was provided by Amersham.

[†] ΔE_D is the energy lost by an incident 200 keV deuteron beam in traversing the thin titanium evaporations.

^{††} E_D is incident energy of a deuteron beam which only just penetrates the Ti T layer.

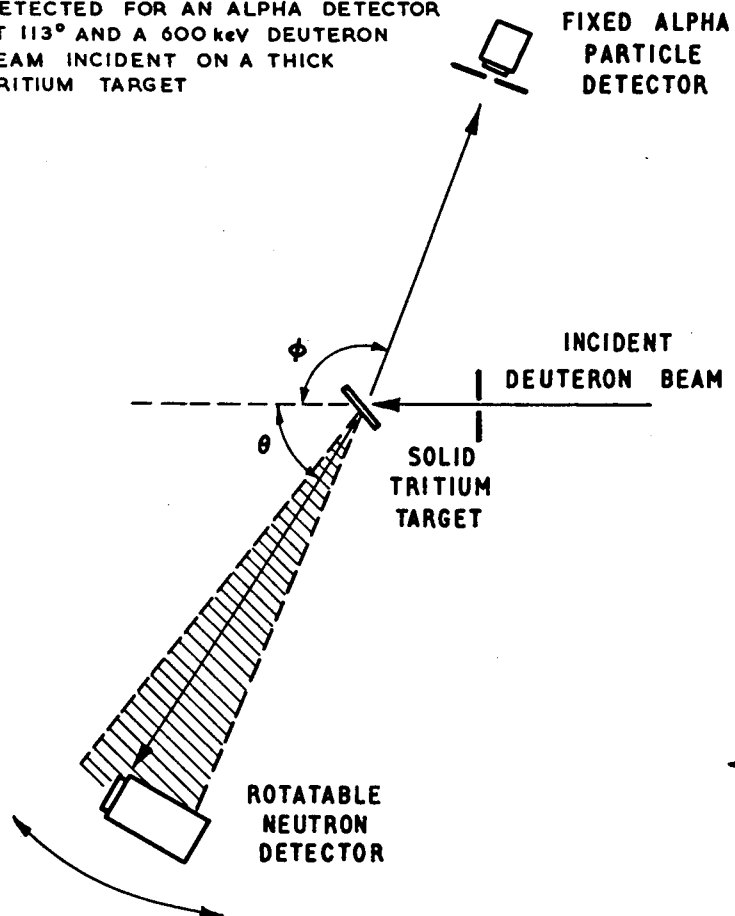
Both sets of figures are calculated on the basis of a 1 : 1 loading of T/Ti

Table 2

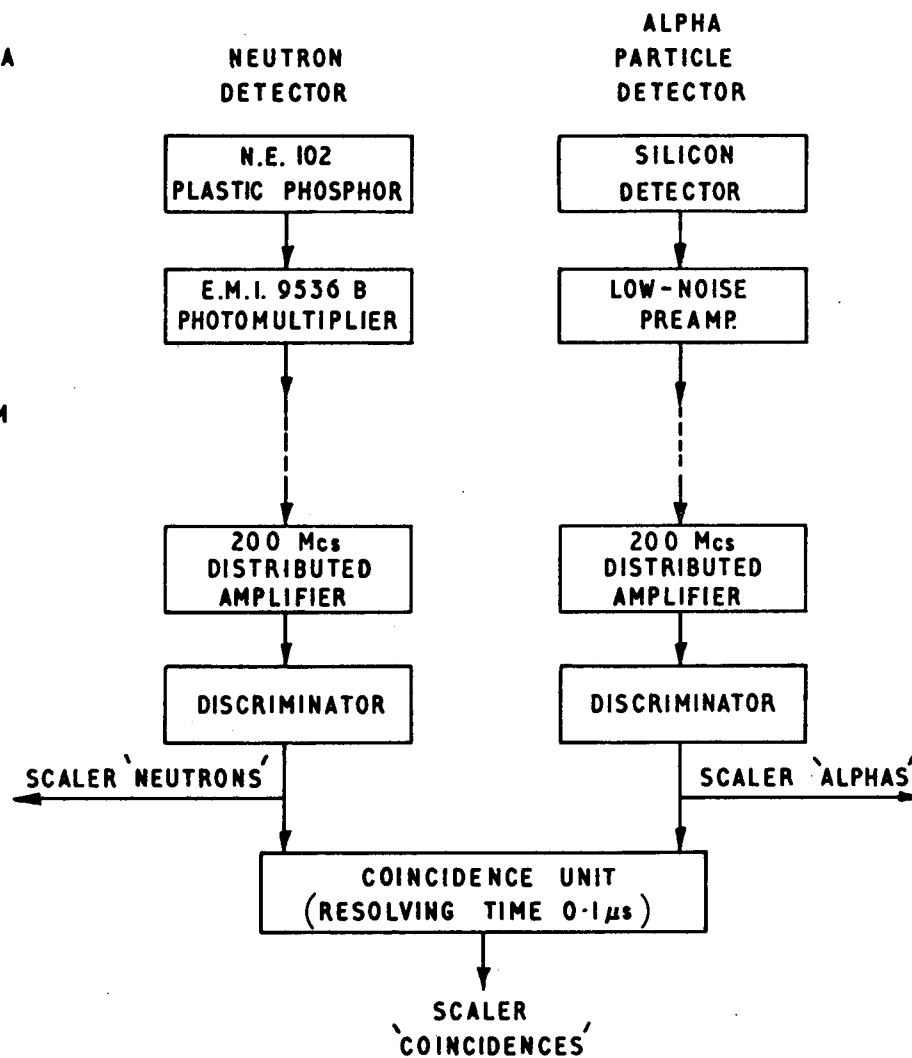
Relative Total Neutron Yield per Alpha for an alpha detector at three angles ϕ to the deuteron beam and calculated for an assumed uniform and non-uniform distribution of tritium in the target.

Incident Deuteron Energy, keV	Relative Total Neutron Yield per Alpha					
	$\phi = 68^\circ$		$\phi = 113^\circ$		$\phi = 163^\circ$	
	Uniform	Non Uniform	Uniform	Non Uniform	Uniform	Non Uniform
100	0.947		1.063		1.169	
200	0.934	0.941	1.084	1.073	1.223	1.195
300	0.927	0.933	1.095	1.086	1.251	1.227
400	0.923		1.103		1.271	
500	0.919		1.110		1.289	
600	0.916	0.912	1.117	1.123	1.306	1.323

THE SHADED REGION SHOWS WHERE THE ASSOCIATED NEUTRONS WOULD BE DETECTED FOR AN ALPHA DETECTOR AT 113° AND A 600 keV DEUTERON BEAM INCIDENT ON A THICK TRITIUM TARGET



a) SCHEMATIC ARRANGEMENT OF COINCIDENCE SYSTEM



b) BLOCK DIAGRAM OF ELECTRONICS

FIGURE 1

Figure 1

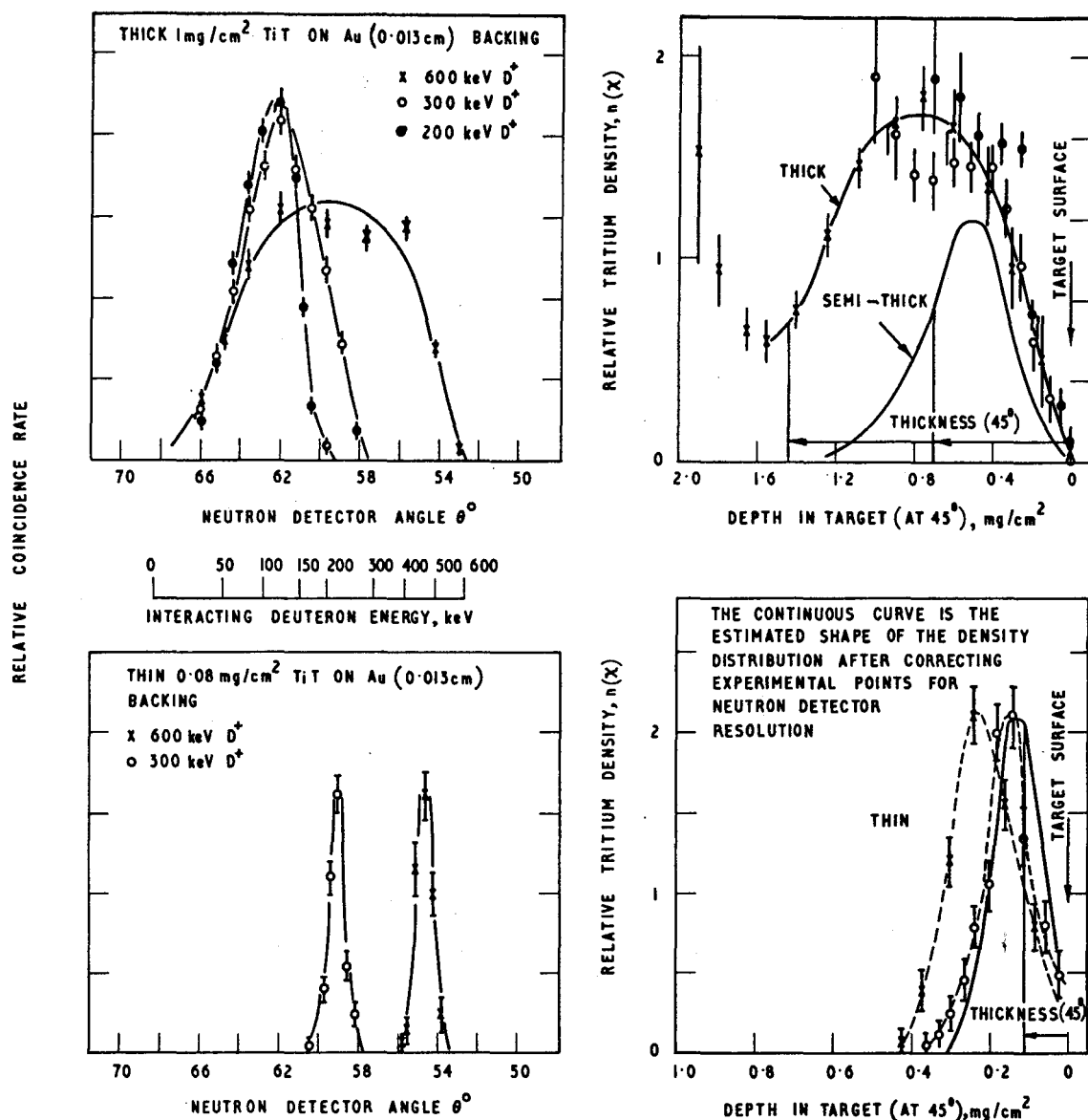


FIGURE 2. VARIATION OF COINCIDENCE COUNTING RATE PRODUCED BY ROTATION OF THE NEUTRON DETECTOR FOR TYPICAL THICK AND THIN TiT TARGETS AND FOR DEUTERON BEAMS OF VARIOUS INCIDENT ENERGIES. THE CALCULATED SHAPES OF THE CORRESPONDING TRITIUM DENSITY DISTRIBUTIONS ARE DISPLAYED ALONGSIDE

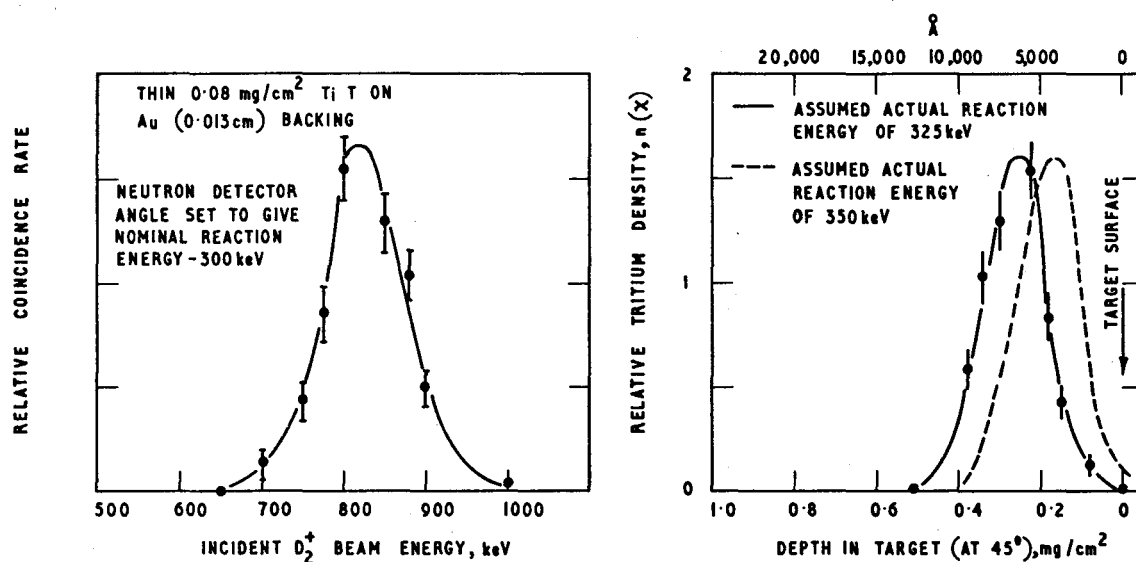


FIGURE 3. VARIATION OF COINCIDENCE COUNTING RATE WITH INCIDENT DEUTERON ENERGY FOR A THIN TiT TARGET KEEPING THE ALPHA AND NEUTRON DETECTORS FIXED. THE TRITIUM DISTRIBUTION OBTAINED FROM THIS IS SHOWN ALONGSIDE

Figure 1 shows the apparatus we have used to investigate the distribution of tritium in targets a list of which is given in table 1. The coincidence rate between α particles detected at a fixed angle and neutrons detected with a rotating counter was recorded. The effect on this coincidence rate of changing the incident deuteron energy or rotating the neutron counter enabled the tritium distribution throughout the thickness of the target to be found.

Consider figure 2 (top left)

At a deuteron energy of 600 kV and at 54° we are detecting reactions which are the result of the full energy of the deuterons. In other words the reactions here originate with the tritium at the surface of the target. As a detector is moved around we are detecting reactions which are deeper and deeper in the target. We can deduce the distribution of tritium in the target from these results and this is shown in figure 2 (top right). Now the nominal thickness of the target allowing for the fact that it is at 45° to the deuteron beam is shown at the bottom so that we can see that there is very little tritium in the surface of the target, that there is a peak in the tritium distribution about half way through the target and that there is even some tritium in the backing. Similar results are obtained at other deuteron energies. Now although the apparatus was not designed for looking at really thin targets (something of the order of $50 \mu\text{g. per cm}^2$) we thought that we would look at some of these and the results are shown in figure 2 (bottom). Now when we calculate the tritium distribution we get in this case the two dotted curves shown. Now these should be the same. The fact that they are different is due to the fact that the angular resolution of our neutron detector is now significant and that the results need to be corrected for this. When there are corrected we get the smooth curve shown from both results. Now the nominal thickness of these very thin targets is subject to quite some doubt but I think that it is

pretty obvious that there is a considerable amount of tritium in the backing; it may be as much as 50%.

Another way of using this method is to keep the angle of the neutron detector fixed and to vary the deuteron beam energy. The results for the thin targets are shown in figure 3. You can see that as the energy of the beam is increased the yield goes up and then falls again. The corresponding tritium distribution obtained is very similar to the results we obtain using the other method. On this figure we have drawn two curves to illustrate the error incurred by an error of 25 kV in the assumed reaction energy. This is the sort of error you would expect if the neutron detector is set at an angle which is uncertain by only 1°. Even so it is fairly clear that there is effectively no tritium at the surface and quite a bit of tritium in the backing. We were not particularly interested in the tritium distribution of the target but we are interested in the total neutron output and how to calculate this. Table 2 gives some results showing the difference between the calculated total neutron yield per alpha particle at a particular angle when you assume either the tritium distribution is uniform or non-uniform. The non-uniform tritium distribution used in the calculation was the distribution we actually measured. It can be seen that there is a difference of between one or two percent in these figures according to the angle and deuteron energy and so if you want to quote a 14 mEV neutron flux to an accuracy of 1% you have to be very careful about the tritium distribution in the target. Now all this work was done under certain conditions and these conditions are not necessarily the same as those for other work described at this meeting. Our current density on the target was fairly small, something of the order of $10 \mu\text{A per cm}^2$; the vacuum in the system was quite good and the targets were kept very clean. There was no deposit of the surface. We checked

this with threshold measurements before and after the experiment. Anybody who is interested in making accurate cross section measurements and needs to know the 14 MeV neutron flux to an accuracy of $\sim 1^\circ$ should measure the tritium distribution in the target at the time of the irradiation.

Monsieur LAVERLOCHERE - PRESIDENT

Je remercie Monsieur PERKIN pour sa très intéressante communication. Nous allons, si vous le voulez bien, tout de suite ouvrir la discussion.

Monsieur RETHMEIER

I should like to make two comments. If a target is used in which the deuterons lose an appreciable amount of energy, the deuterons will be scattered. I think the scattering in this case may be as large as 5 or 10 degrees and this will ruin your results of course.

The second comment is, that your results about the tritium distribution in the titanium layer are in disagreement with our results, about which I talked yesterday. I mean the results of the measurements of the proton spectra from $d(d,t)p$ reactions in Ti-d targets. This experiment showed that the deuterium was almost completely in the titanium and not in the copper backing.

Monsieur PERKIN

It is true that both the alpha particles, the deuterons and the neutrons are all scattered in the target material but the coincidence method eliminates many of these events. To be quite honest, we hadn't calculated the effect on our

resolution of small angle scattering but we have thought about it and I don't think it would change our results significantly. You say that you find no deuterium in the backing. I am quite prepared to believe this. That is why I stated the conditions of our particular experiment and emphasized that the results are probably sensitive to these conditions.

Monsieur MUNZER

Ich möchte zu den Versuchen bemerken, dass wir in unserem Institut ähnliche Versuche durchgeführt haben und dabei festgestellt haben, dass die Winkelverteilung der Neutronen bei festgehaltenem Detektor für die assoziierten Alpha-teilchen als Funktion der Betriebsdauer sich geändert hat. Wir haben den Effekt so erklärt, dass das Target durch Zerstäubung im Zentrum des Brennflecks Tritium verloren hat und nach einiger Zeit die Neutronen nicht mehr vom ganzen Brennfleck sondern von einer ringförmigen Neutronenquelle ausgesendet worden sind. Der Effekt war der, dass im Laufe der Zeit der Kegel der Neutronen immer breiter wurde. Das ist unter Umständen ein Effekt, den man bei der Deutung der eben geschilderten Kurven mit berücksichtigen müsste.

Monsieur REIFENSCHWEILER

Es ist doch sehr überraschend, dass Sie einen so hohen Prozentsatz an Tritium in der Targetunterlage finden. Das Material, was Sie als Unterlage verwendet haben, z.B. Kupfer, ist bekannt als ein endothermer Wasserstoffabsorber und die Aufnahmekapazität für Wasserstoffisotope ist um mehrere Größenordnungen kleiner als für Titanium. (x)

(x) D.P. SMITH, Hydrogen in metals, Univ.of Chicago Press, Chicago, 1948

In diesem Zusammenhang möchte ich fragen, ob Sie einen Unterschied für verschiedene Unterlagenmaterialien gefunden haben ?

Monsieur PERKIN

No, we did not find any difference. These experiments with the very thin targets are no where near as accurate as those with the thick ones. There is a considerable uncertainty about the nominal thickness of the target and even though we may have the average thickness correct there could still be variations over the target surface. Some of these targets are only $\mu\text{gr.}$ thick.

Monsieur FABIAN

Ich möchte einiges über die Ursachen dieser Tritiumverteilung sagen. Zunächst bei Beginn des Dampfens hat man die Unsauberkeit durch Gasen. Bei höherer Temperatur der Unterlage tritt auch eine Diffusion von Titan in Kupfer auf, hier ist die Tritiumkonzentration daher geringer. Abb.1. Das würde, von der Rückseite her betrachtet, den Anstieg der Tritiumkonzentration erklären. Gutes Vakuum vorausgesetzt, müsste die Tritiumkonzentration in der Mitte der Schicht das Maximum erreichen. Der Konzentrationsabfall nach vorne sollte durch die Oxydation der Schicht erklärbar sein. Abb.1a. Sollte das Vakuum durch eventuelles Erwärmen der Elektroden schlechter werden, hat man nach vorne einen kräftigeren Abfall. Abb.1b. Die Konzentrationsverteilung ist weitgehend, wie wir gestern schon gesehen haben, vom Vakuum abhängig. Es geht die Dampfungsgeschwindigkeit sehr stark ein, weil man das Vakuum durch Getterwirkung beeinflusst. Die Temperatur, bei welcher das Target aus der Glocke herausgenommen wird, bedingt die Dicke der Oxydschicht und damit den Tritiumgehalt in der vordersten Schicht.

Abb.1

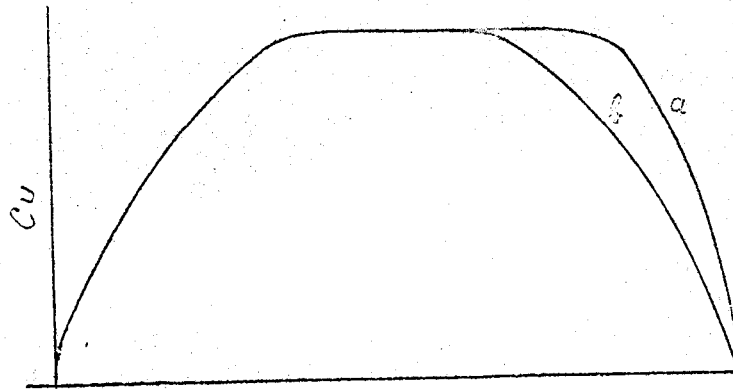


Abb. 1

Monsieur REIFENSCHWEILER

Der hohe Gehalt an Tritium in der Unterlage wäre also evtl. durch die Diffusion von Titanium in das Unterlagenmaterial zu erklären ? Das ist doch Ihre Ansicht, Herr Fabian ?

Monsieur FABIAN

Nein

Monsieur REIFENSCHWEILER

Nicht ? Oder haben Sie eine Erklärung für diesen hohen Tritiumgehalt in der Unterlage ?

Monsieur PERKIN

We have done quite a few experiments to try and find out whether there really is tritium in the backing but these have been inconclusive. We have actually stripped off the titanium and looked for tritium with no result but we may have got rid of the tritium in the process.

Monsieur LAVERLOCHERE - PRESIDENT

Je voudrais vous demander si vous connaissez la valeur du vide, au niveau de la cible ?

Monsieur PERKIN

The vacuum was of the order of 10^{-5} mm during the experiment.

Monsieur LOMER

The conditions of the preparation of the target are very important in determining the subsequent distribution of tritium. The sort of factors which play an important part are the temperature during evaporation, the temperature of the substrate during loading of the target; if this is too high then tritium will diffuse into the substrate. The conditions of the target during storage prior to use in the accelerator are also important and in fact one needs the detailed history of these targets before one can start to explain the surface behaviour of the targets as described. We have found that with rare-earth targets the neutron output when they are first put in an accelerator varies widely from one target to another and that if we plot the neutron

output when they are first put in an accelerator varies widely from one target to another and that if we plot the neutron output as a function of incident ion beam energy then there is apparently a surface deficiency of tritium in many cases.

If these targets are then baked under fairly high temperature conditions the uniformity of the neutron output is greatly increased from one target to another indicating that the surface deficiency of tritium has been overcome, presumably by diffusion from the lower layers of the target. I think this sort of measurement is very valuable in indicating the tritium distribution in targets I hope it will be followed up with some further measurements in which the main object is to look at the target rather than the effects which have so far been of interest.

Monsieur FABIAN

Die Tritiumverteilung würde im Idealfall einen Rechteckverlauf haben, (Abb.1) wenn bei A Kupfer und bei B die Vorderseite des Targets ist. Durch Diffusion Cu-Ti wird bei a die Kurve abgeflacht. Wird das Target ohne an Luft zu kommen mit Tritium imprägniert, wird die Vorderseite voll sein, gutes Vakuum vorausgesetzt. Nimmt man nun das Target an die Luft, bekommt man bei b, der Temperatur und der Lagerungszeit entsprechend, eine steilere oder mehr abgeflachte Kurve, bedingt durch die Oxydschicht. Wird das Target vor dem Imprägnieren an der Luft gelagert, ist der Tritiumverlust gering. Abb.2a. Wird das Target sofort nach dem Dampfen oder noch in der Aufdampfapparatur selbst imprägniert, dann ist der Tritiumverlust beim Lagern grösser. Abb.2b. Der Tritiumverlust macht in einem Jahr, wenn man den rapiden Abfall weglässt, ca. 10°/o aus.

Abb. 1 & 2

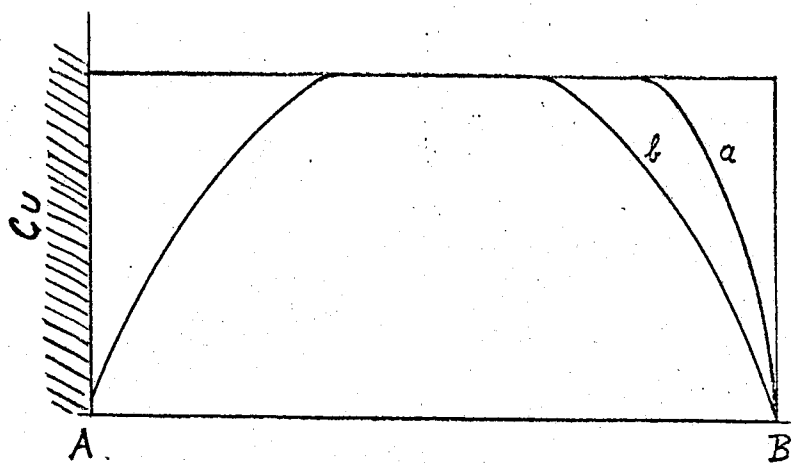


Abb. 1

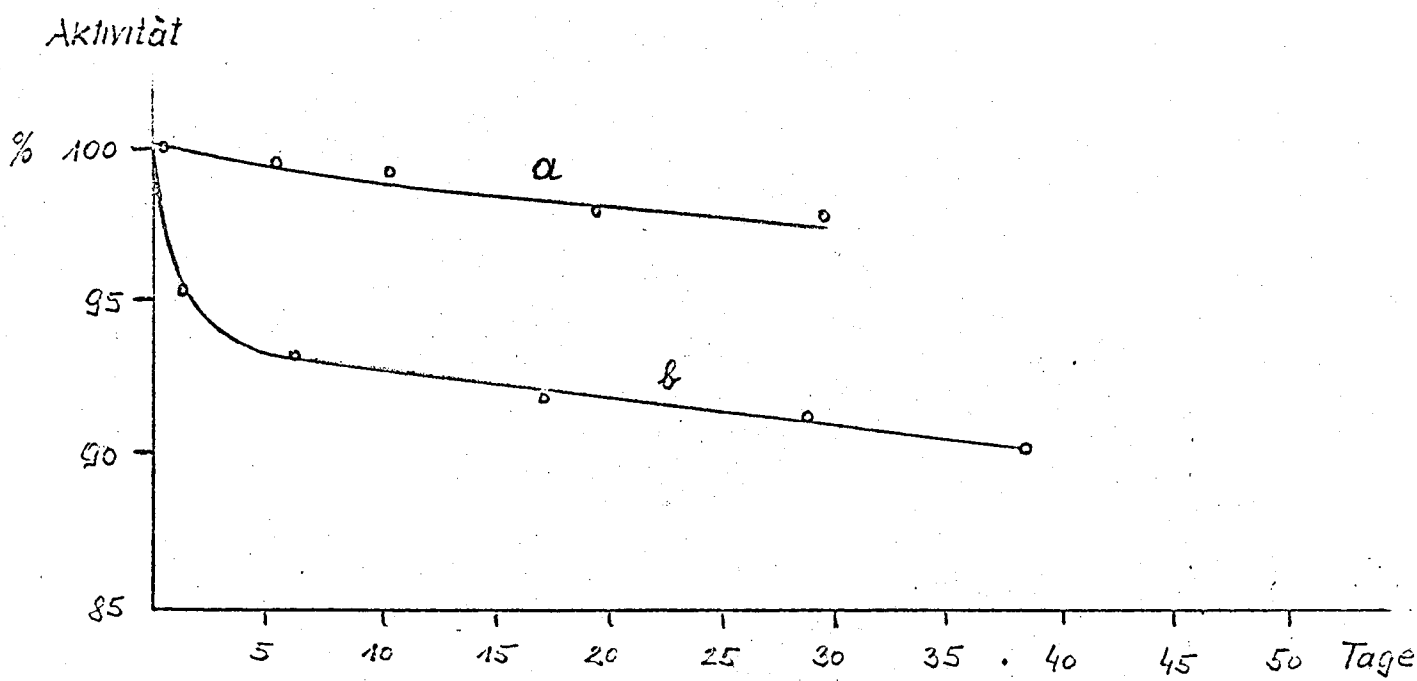


Abb. 2

Monsieur LAVERLOCHERE - PRESIDENT

Puis-je vous demander quelles sont les valeurs du vide que vous vouliez indiquer ?

Monsieur FABIAN

Es soll auf alle Fälle besser als 10^{-5} mm Hg sein.

Monsieur PERKIN

I would just like to ask whether these curves have been measured or whether they are your guesses.

Monsieur FABIAN

Es sind gemessene Kurven, zwar nicht auf Ihre Art, sondern durch Messung der Tritiumaufnahme und des Tritiumverlustes. Es sind Mittelwerte von mindestens 10 Messungen bei gleichen Bedingungen, also gleichzeitig gedampfter und gleichzeitig imprägnierter Schichten.

Die Kupfer-Titan-Diffusion, wie ich sie schon erwähnt habe, wurde getestet, indem auf ein fertiges, aktives Target Kupfer gedampft wurde, das Target wurde dann getempert (ca 150°C) und der Tritiumverlust gemessen. Danke schön.

Monsieur PERKIN

I'm still not quite clear as to how you can plot a distribution like that which has many changes in density from measuring the loss of tritium from the surface.

Monsieur MUNZER

From the quantity of lost tritium during the first phase of storage one can make guesses as to the thickness of the oxide layer on the surface of the titanium. If one has evaporated from one crucible one gets a thickness of oxide after some time of storage, for instance. If one has evaporated from several crucibles and taken the layer out of the evaporation plant in between the evaporation processes, one can make a guess for the tritium distribution which gives us our sawtooth curve like sketched here. So this is not measured by neutron yields or so, but it's an educated guess, we hope.

Monsieur LAVERLOCHERE - PRESIDENT

Nous allons, si vous le voulez bien, clore ici cette discussion très intéressante concernant la concentration et de répartition du tritium dans la cible.

Le point suivant I 2 - 13 concerne les cibles de grande surface. Le docteur FLEISCHER, de Berkeley, va nous présenter sa communication qui a pour titre :

" A 14 MeV neutron source capable of delivering a 1000 Rad dose uniformly over a 6 x 6 foot area "

Monsieur FLEISCHER

SUMMARY

This paper describes some aspects of a feasibility study¹ on a high flux, large area 14 MeV neutron generator. The purpose of this study was to provide a preliminary design of a 14 MeV neutron generator capable of uniformly delivering a 1000-rad dose to a 6 x 6-foot target. A source of about

2×10^{13} 14 MeV neutrons per second for four hours yields a 1000-rad dose with a uniformity of ten per cent to a 6 x 6-foot target located ten feet from the source. There are numerous charged particle reactions capable of yielding significant numbers of 14 MeV neutrons, but the requirement for mono-energetic 14 MeV neutrons precluded all reactions but the (d-T) reaction. The 14 MeV neutrons are produced by a 250 mA deuteron beam with 250 keV energy impinging on an 18-inch diameter tritiated-titanium target. The use of a large area tritiated-titanium target makes target cooling and depletion problems manageable.

NEUTRON PRODUCING REACTIONS

Numerous charged particle reactions can be used to produce 14 MeV neutrons. All but the $T(d,n)He^4$ reaction exhibit strong excitation of the higher states of the residual nucleus or in several cases, breakup of the deuteron or the compound nucleus. This leads to one or more lower energy neutron groups or a low energy continuum.

Due to the absence of excited states and the high threshold for breakup of the He^4 nucleus, the $T(d,n)He^4$ reaction produces monoenergetic neutrons at 14 MeV. The Q of the reaction is 17.6 MeV and the energy of the neutrons resulting from the absorption of zero energy deuterons is $E_0 = 14.1$ MeV. When the deuteron has a kinetic energy < 0 , the energy of the neutron is determined uniquely by its angle of emergence. The neutrons are emitted with energies $> E_0$ in the forward direction and with energies $< E_0$ in the backward direction. A thick target will degrade the energy of the deuteron beam and generates a small spread in energy of the emitted neutrons. When a 100-keV deuteron beam strikes a tritium target the energy

of the neutrons emitted varies with the angle of emission from 14.8 MeV for neutrons emitted at 0° to 13.4 for neutrons emitted at 180° ; however, the number of neutrons emitted per unit solid angle is approximately equal at all angles.

The total cross section for the $T(d,n)He^4$ reaction has been measured by many investigators for energies from 8 keV to 10 MeV.²⁻⁸ These data are shown in Figure 1.⁹ The neutron yield from a thick target is calculated from the reaction cross sections, the rate of energy loss of deuterons in the target and the density of tritium in the target. The neutron yield as a function of deuteron energy from a 1:1 tritium-titanium loaded target is shown in Figure 2.¹⁰

The neutron yields from various reactions are shown in Table 1. These yields are calculated for an equivalent target thickness of 1 MeV for all but the d-T reaction which was calculated for a thick Ti-T target with a 1:1 loading ratio and a deuteron energy of 250 keV. The cross sections of the d-T, d-D, and d-Li reactions are known at these energies, but the other cross sections were extrapolated from lower energy data.

Table 1

Reaction	Yield $\frac{\text{Neutrons}}{\text{sr-mA-sec}}$		Bombarding Energy (MeV)	Q (MeV)
	14 MeV	Low Energy		
$T(d,n)He^4$	1.25×10^{10}	None	0.250	17.6
$D(d,n)He^3$	100×10^{10}	150×10^{10}	11	3.26
$Li^7(p,n)Be^7$	17×10^{10}	40×10^{10}	16	-1.64
$Li^7(d,n)Be^8$	0.72×10^{10}	4×10^{10}		15
$C^{12}(d,n)N^{13}$	5.3×10^{10}	40×10^{10}	15	- 0.281
$N^{14}(d,n)O^{15}$	7×10^{10}	70×10^{10}	9	5.1

Figure 1)

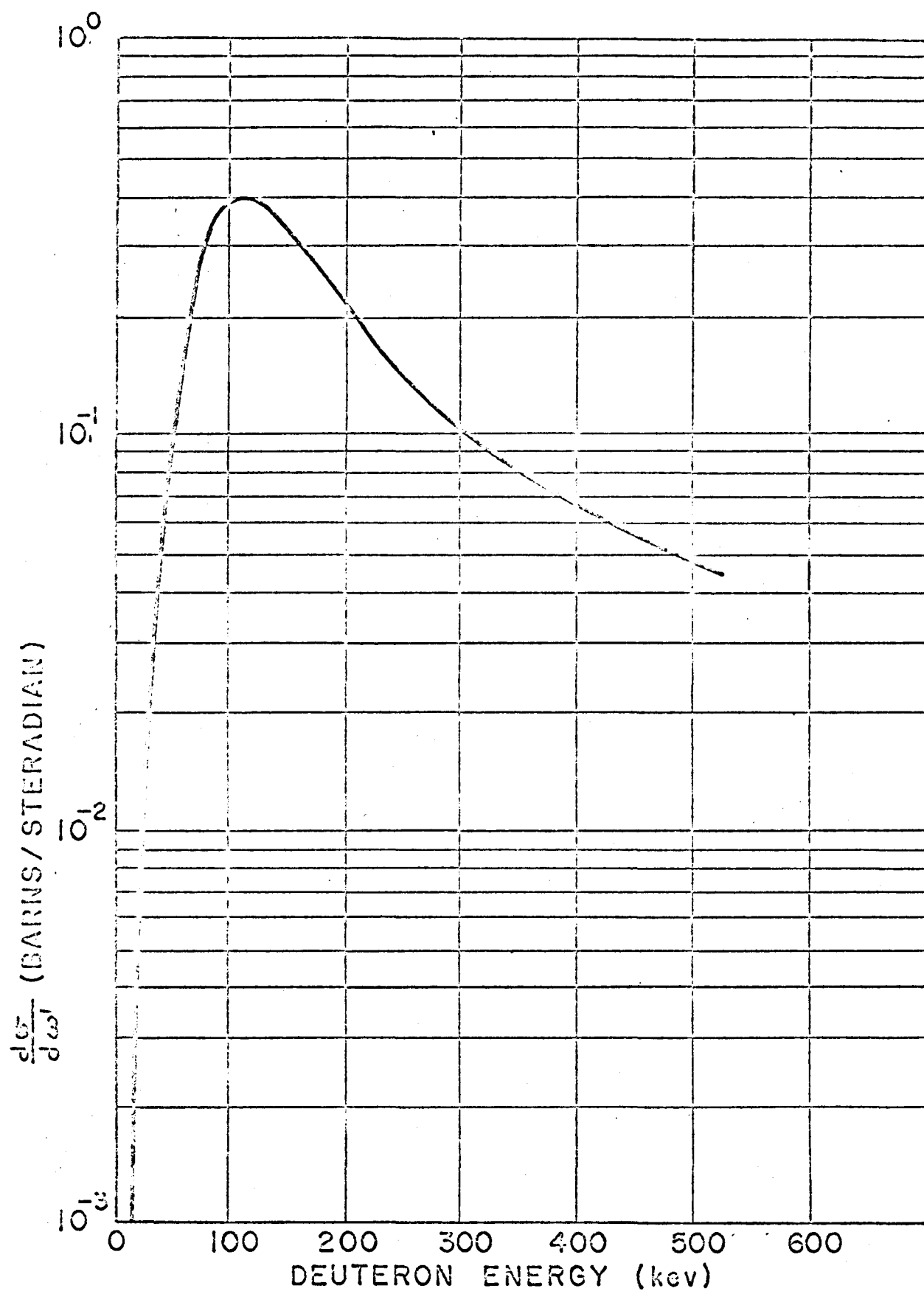
FIGURE 1-DIFFERENTIAL CROSS SECTION FOR $T(d,n)He^4$ REACTION AT 0°

Figure 2

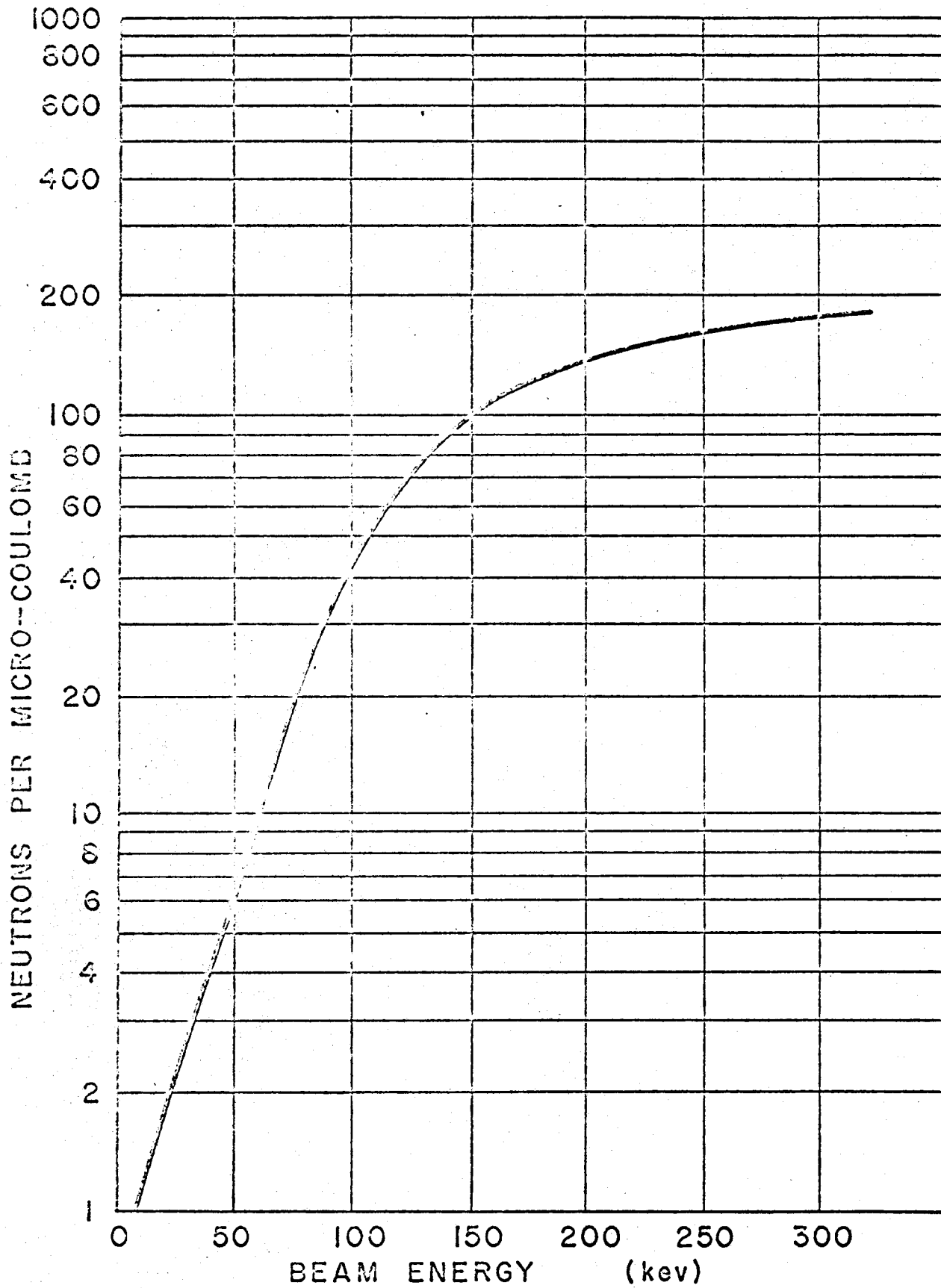


FIGURE 2—NEUTRON YIELD FOR 1:1 LOADED TI-T TARGET

BEAM AND TARGET CONSIDERATIONS

The energy absorbed per gram of tissue for 14 MeV neutrons is 0.37 MeV/gram per neutron/cm², or 5.9×10^{-9} rad per neutron/cm².¹¹ Thus an exposure of about 2×10^{11} neutrons/cm² is required to deposit 1000 rads in tissue. It can be shown that 2×10^{11} plus or minus ten per cent neutrons/cm² can be produced in four hours by a single neutron source emitting 1.4×10^{13} neutrons/second, nine feet from a 6 x 6-foot target. It can also be produced by four neutron sources each producing 8.7×10^{11} neutrons/second arranged in a plane 3.5 feet above, below, to the left and to the right of the centerline of the target. The use of a single source uniformly irradiating the test specimen requires a geometry from which a large percentage of the produced neutrons are lost; consequently, it requires greater neutron production with its concomitant problems of greater heat dissipation and higher beam current.

The use of a multiple source system requires lower total neutron production than with a single source system. Hence, lower beam current and less cooling are required. However, uniformity of the radiation dose at the test specimen is more difficult to obtain because of a difficult geometry and probable changes in the output of the various sources as the targets deplete with age.

The calculations above do not take into account any loss of neutrons from scattering in the air or scattering in the neutron source itself. If an "effective removal" cross section σ_{rem} which is slightly less than the total cross section and greater than the non-elastic cross section is used to calculate transmission losses then the required source strength in neutron/second increases by about thirty per cent.

The largest factor determining the life of the target and yield of 14 MeV neutrons versus time is probably the depletion of the tritium from the target by replacement with deuterium. Other modes of target poisoning such as the build-up of a contaminant layer on the target face can probably be prevented. The loss of tritium by excessive heat can be minimized by adequate target cooling. The replacement of tritium by deuterium in the worst case would be a direct one to one replacement which would give a linear decrease in yield with time. It is probable that replacement is less severe. For example the rate of replacement of tritium by deuterium may depend upon the tritium concentration as well as the deuteron flux.

Experimental results indicate that the yield falls off to one half of its initial value after approximately 600 μ amp-hours per cm^2 of target area for 250 keV deuterons and that in the 100 to 400 keV region the life of the target is approximately proportional to beam energy.¹² The value of 600 μ amp-hours/ cm^2 can be related to the energy E of the deuteron by the relationship:

$$q_{1/2} = \frac{E}{250} 600 \mu\text{amp-hours}/\text{cm}^2$$

or

$$q_{1/2} = \frac{E}{250} 2.16 \frac{\text{coulombs}}{\text{cm}^2}$$

where $q_{1/2}$ is that charge which reduces the yield to one-half and is related to the charge q_e which reduces the yield to $1/e$ by $q_e = \frac{q_{1/2}}{0.693}$.

If the target deteriorates at an exponential rate and the yield drops to $\frac{1}{e}$ of its initial value after a charge of q_e coulombs per cm^2 has been deposited on the target, the number of neutrons, dn , produced per cm^2 of target by a charge

dq can be expressed as :

$$dn = k_E e^{-q/q_e} dq \quad (1)$$

where $k_E = \left(\frac{dn}{dq}\right)_E$ is the initial neutron yield at an energy E .

The total number of neutrons n_t produced per cm^2 by a total charge q_t per cm^2 of target is found by integrating equation (1) and is

$$n_t = q_e k_e \left(1 - e^{-q_t/q_e} \right) \quad (2)$$

The total charge for a target with an area A required to yield n_t neutrons is given by :

$$Aq_t = -Aq_e \ln \left(1 - \frac{n_t}{q_e k_E} \right) \quad (3)$$

The deuteron beam current is given by the total charge divided by the bombardment time, or :

$$i = \frac{Aq_t}{t} = \frac{-A}{t} q_e \ln \left(1 - \frac{n_t}{q_e k_E} \right) \quad (4)$$

Using equation 4 and Figure 2 the values of beam current versus energy required to obtain 3×10^{17} neutrons in four hours are shown in Table 2.

$E(\text{keV})$	$q_e \left(\frac{\text{coul}}{\text{cm}^2} \right)$	$k_E \left(\frac{\text{neutrons}}{\text{coul}} \right)$	$q_t \left(\frac{\text{coul}}{\text{cm}^2} \right)$	$i(\text{mA})$
150	1.88	1×10^{14}	7.9	898
200	2.5	1.3	2:11	231
250	3.12	1.6	1.45	165
300	3.75	1.8	1.21	138

Table 2

It can be shown that the percentage of molecular ions strongly effects the required beam current and must be kept as low as possible. For instance, at 250 keV, a 20 per cent molecular beam requires a beam current of 223 mA and a 40 per cent molecular beam requires a 350 mA beam current.

If it is assumed that the tritium in the target is replaced by deuterium in such a way as to give a linear decrease in tritium control with time then Figure 3 shows depletion of neutron yield versus total accumulated deuteron beam current. Also shown in the figure are experimental points for yield from a zirconium-tritide target.¹² Figure 4 shows the neutron production versus time for several methods of tritium depletion for an 18-inch diameter target with an incident beam current of 250 mA of deuterons at 250 keV. The solid line shows a linear decrease based on a direct one-to-one replacement of tritium with deuterium. The dotted line shows a decrease in neutron production due to a replacement of tritium by deuterium at a rate dependent upon the tritium concentration. The upper dot-dash line is based on the optimistic assumption that the target with a one-to-one loading of tritium to titanium can absorb deuterium up to 40 per cent of the initial tritium concentration before starting to lose tritium by displacement.

The amount of titanium and tritium in the target assumed for the above life and yield calculations was that required to give a one-to-one ratio of atoms for a thickness equal to the depth of penetration of a 250 keV deuteron which was 1 mg/cm^2 of titanium and 0.61 c/cm^2 of tritium. For practical purposes twice this thickness should be used to insure against non-uniformity of tritium versus depth. Therefore, for a design thickness of 2 mg/cm^2 and 1.2 C/cm^2 , the total quantity of titanium per 18-inch target would be 3280 mg and the total tritium would be 1970 curies.

Figure 3

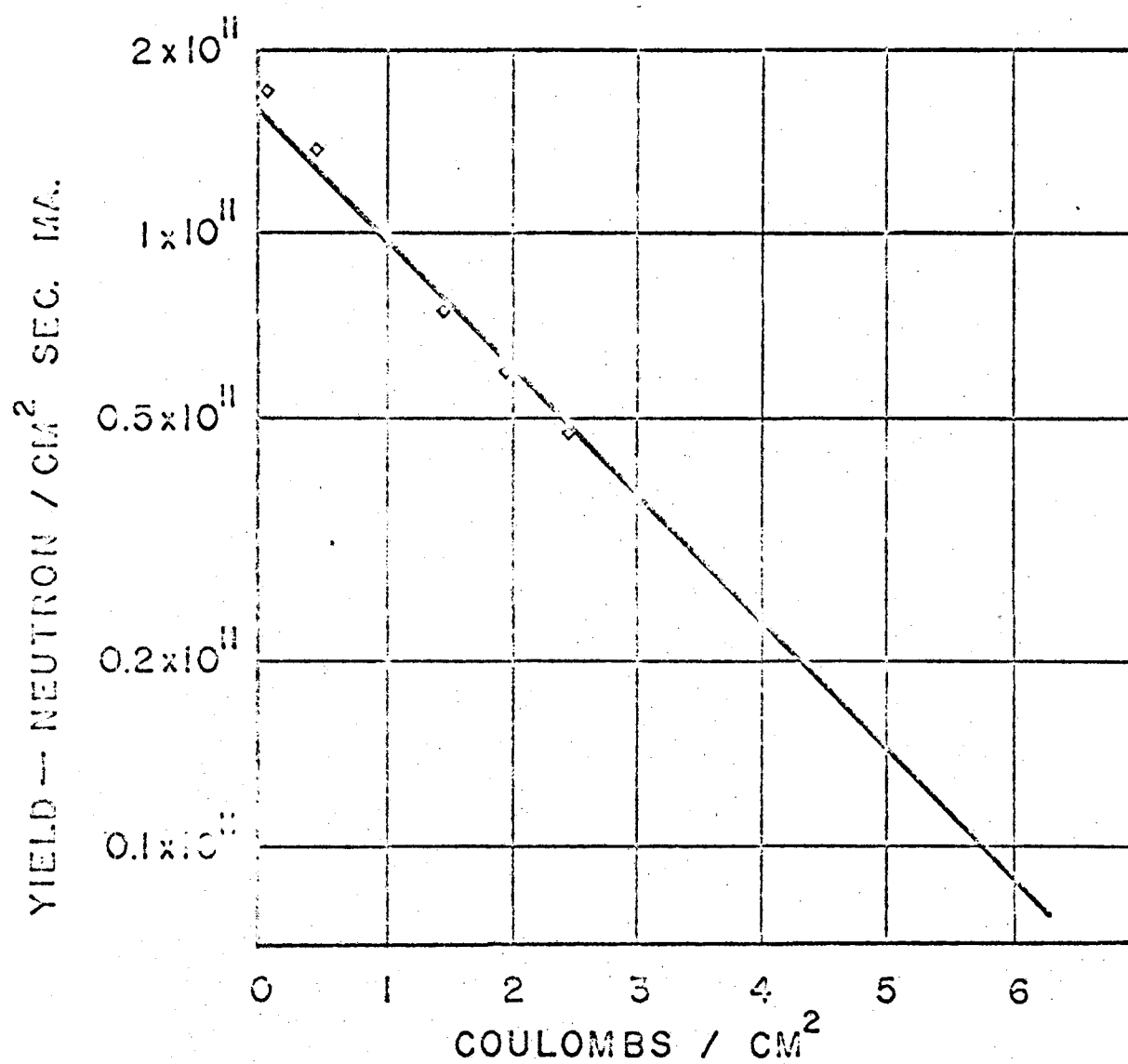


FIGURE 3 — DEPLETION OF NEUTRON YIELD

Figure 4

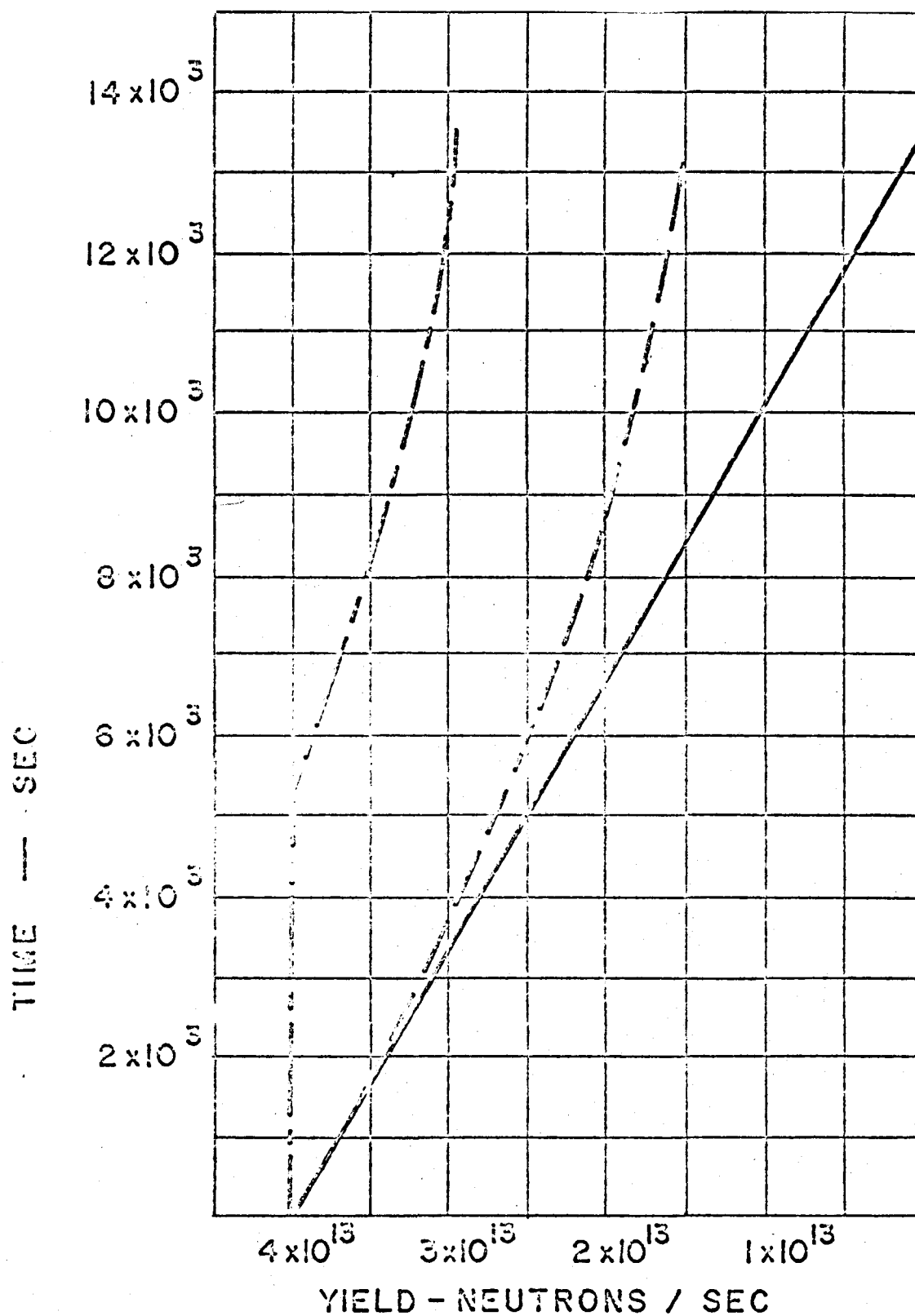


FIGURE 4 - NEUTRON YIELD VS TIME

A 250 mA beam at 250 keV delivers 62.5 kW of power to an 18-inch diameter target. If the current has a gaussian distribution at the target, the power concentration at the center of the target will be 88 watts/cm^2 . This power is dissipated through a target backing material, which has a high thermal conductivity, to the cooling water which flows at high velocities thereby giving a high heat transfer coefficient. One possible target design contains a multitude of 3/16-inch diameter holes drilled through the beryllium copper backing parallel to the surface and spaced 0.060 inches from the surface and from each other. A flow of 124 gallons per minute through the cooling tubes can produce the necessary heat transfer coefficient and keep the surface temperature at about 100°F .¹³

CONCLUSIONS

This neutron generator system generates 14 MeV neutrons through the T(d,n)He^4 reaction. It consists of a water-cooled titanium-tritide target which is bombarded with 250 keV deuterons from a duoplasmatron ion source. This neutron generator gives a total dose of 1000 rads in four hours to a 6 x 6-foot area located ten feet from the generator.

The equipment should be located in three rooms, the exposure room, the accelerator room and the mechanical equipment room. The exposure room which contains the test specimen is connected by a neutron channel to the accelerator room. The mechanical equipment room contains the cooling water equipment, the power supplies and the target preparation equipment.

The test specimen is located in the exposure room at a distance of about ten feet from the neutron source to

insure a uniform irradiation of the specimen. The exposure room should be designed to minimize the background of lower energy neutrons which would give an undesirable contribution to the radiation dose. Much of the flux of neutrons from the target does not travel toward the test specimen but remains in the accelerator room from which it must be absorbed in the walls to prevent an excessive background flux of low-energy neutrons from traveling down the channel and striking the specimen.

The accelerator shown in figure 5 consists of a high current duoplasmatron ion source based on an ion source developed and currently in use by Dr.E.KELLY at Oak Ridge National Laboratory, a drift tube, a power supply, a vacuum system, and the target is a water-cooled titanium-tritide target. The water cooling system for the titanium-tritide target is a closed loop system cooled by a chilling unit. Any short-lived radioactivity induced in the cooling water is allowed to decay before leaving the exposure room by leaving it in a holding tank which is located inside the shielding enclosure. A ventilation system should maintain a negative pressure of about one half inch of water inside the shielding enclosure when the shielding door is closed. The radioactivity induced in the air surrounding the accelerator will be flushed out the stack instead of diffusing out into populated areas through cracks in the shielding.

REFERENCES

1. "Feasibility Report on a High Flux, Large Area 14 MeV Neutron Generator", William M. Brobeck and Associates Report N° 118-1-R1.
2. Arpold, Phillips, Sawyer, Stovall and Tuck, Phys. Rev. 93 483 (1954)
3. Conner, Bonner and Smith, Phys. Rev. 88, 468 (1952).
4. Argo, Taschek, Agnew, Hemmendinger and Leland, Phys. Rev. 87, 612 (1952)

Figure 5

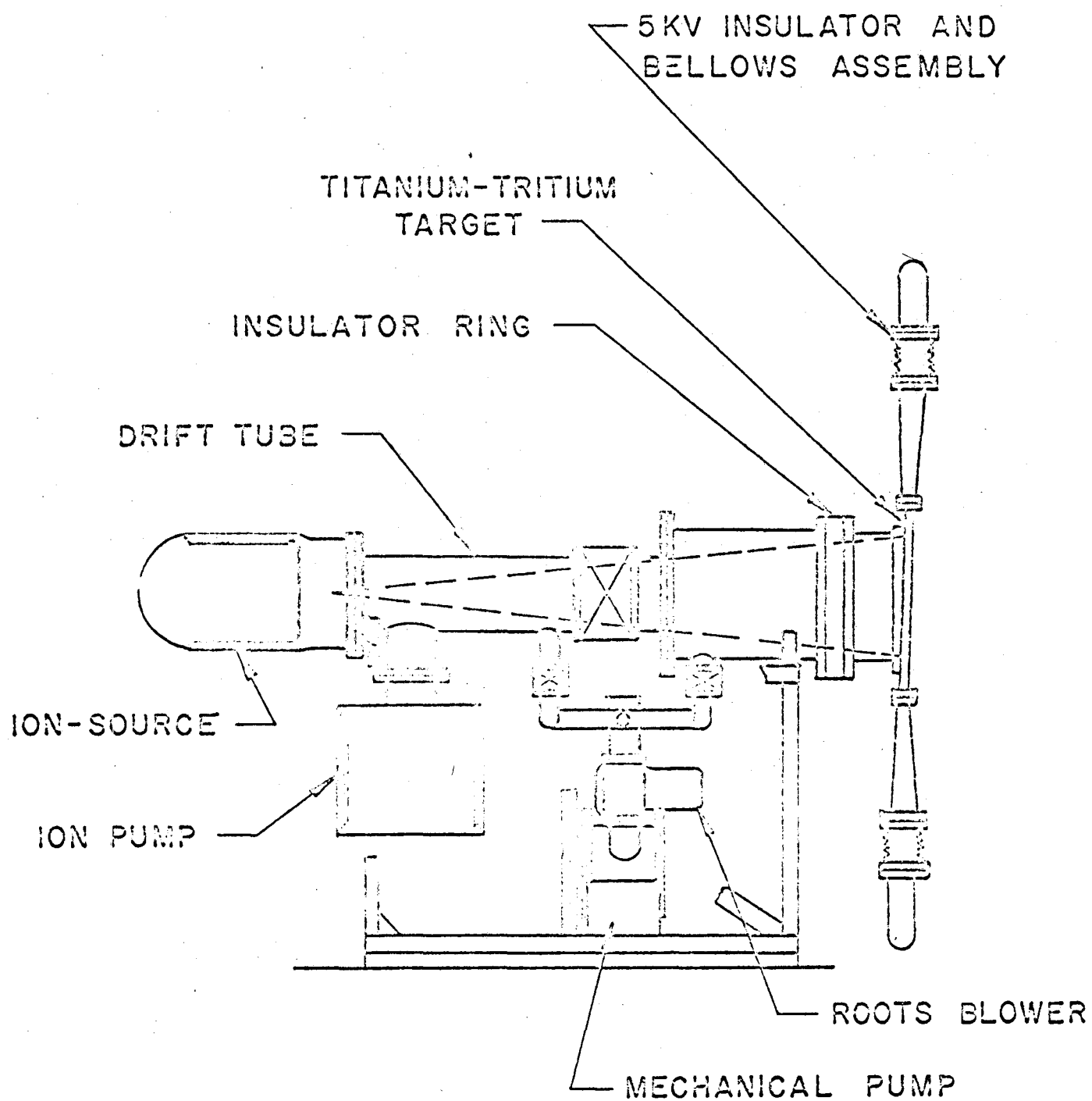


FIGURE 5 - 14 Mev NEUTRON GENERATOR

5. S.J.Bame,Jr. and J.E.Perry,Jr.,Bull Am.Phys.Soc. II, 1, 93 (1956).
6. A. Hemmendinger and H.V.Argo, Phys.Rev.98, 70 (1955)
7. T.F.Stratton and G.D.Freir, Phys.Rev.88, 261 (1952)
8. Brolley, Fowler, and Stovall, Phys.Rev.82, 502 (1951)
9. N.Jarmie and J.D. Seagrave, LA-2014, (1937)
10. Ruby and Wilcox, Lawrence Radiation Laboratory Engineering Note (Aug. 10, 1956)
11. G.S. Hurst, "Fast Neutron Dosimetry" in Fast Neutron Physics, Part I, J.B. Marion and J.L. Fowler, Editors, p.825
12. J.H. Coon, "Targets for the Production of Neutrons," in Fast Neutron Physics, Part I,J.B. Marion and J.L.Fowler. Editors. (Interscience Publishers, New York, 1961) p.695.
13. Wm.H.McAdams, Heat Transmission, McGraw-Hill Book Company,Inc., New York and London (1942), p.183.

Monsieur LAVERLOCHERE - PRESIDENT

Nous vous remercions Mr. FLEISCHER. Y a-t-il des questions sur cette communication ?

Monsieur GUNTHER

Welche Experimente sollen mit einem so grossen Beschleuniger ausgeführt werden ?

Monsieur FLEISCHER

This accelerator was designed to irradiate large animals like a mule where you want to get same dose in the hooves and

tips of the ears. This accelerator is being built for the Armed Forces Radio Biological Research Institute in Washington DC and is strictly a biological instrument. A thing of interest is that an accelerator of this magnitude costs about three quarters of a million dollars to construct and of that more than half of it is for the preparation and handling of the large tritiated targets.

Monsieur LAVERLOCHERE - PRESIDENT

S'il n'y a pas d'autre question, nous allons maintenant entamer la discussion sur la mesure du flux de neutrons émis. C'est le point I2 E. Le premier paragraphe de ce point concerne les détecteurs à neutrons, et la standardisation des mesures. J'aurais voulu, d'abord, vous donner brièvement la convention qui a été établie au Congrès du Texas en Avril, concernant la standardisation de ces mesures de flux de neutrons de 14 MeV:

voir page suivante

THE TEXAS CONVENTION ON THE MEASUREMENT OF
14 M.E.V. NEUTRON FLUXES FROM ACCELERATORS

INTRODUCTION

There exists at present no generally accepted method for determining effective fluxes of 14 MeV neutron energies from generators using the $T(d,n)He$ reaction which can be used for fast neutron activation analysis. In order to facilitate inter-laboratory comparisons of fluxes and establish a common basis for the determination of fast neutron fluxes quoted in the Activation Analysis literature the following convention has been adopted by the undersigned :

SPECIFICATION

The effective fluxes for sample activations are to be measured by exposing high purity (99.9%+) copper disks of 0.25 mm thickness and 1 cm. and/or 2.5 cm diameter for 1 minute to the neutron flux to be measured. After a minimum cooling time of 1 minute, to permit sample transfer and decay of interfering N^{16} activity, the positron annihilation radiation emitted by the disk is counted and the disintegration rate of the Cu^{62} activity determined for the time of the end of the activation. The flux is then given in disintegrations/minute/gram copper and the size of the disk is stated.

(Recommendation : It is recommended that where possible the disks are counted by placing them at a distance of 3 cm. from the centre of the top surface of a 3" x 3" NaI(Tl) scintillation counter

using a 1 gm/cm^2 thick plastic beta absorber extending over the face of the crystal. Using the usual techniques the area of the photopeak may then be corrected for subtended angle Ω , detector efficiency ϵ_t , and photopeak fraction P as described by R. Heath in IDO-16880 (1964)

Appendix to the Texas Convention on the Measurement
of 14-MeV Neutron Flux from Accelerators

R.L. Heath
National Reactor Testing Station
Idaho Falls, Idaho

In the interest of providing a uniform method for assay of copper flux monitors, the following procedure is suggested to provide a standard method of measurement and data analysis which can readily be reproduced by most experimenters. It is proposed that the activated foils be assayed by quantitative scintillation spectrometry to obtain the disintegration rate for the 9.9-min Cu^{62} activity induced in the foil by the $n,2n$ reaction. If appropriate corrections are applied for irradiation time, decay following irradiation, and the various experimental parameters of the counting arrangement, the result will provide a number which will be proportional to neutron flux.

It is suggested that the copper disks (either 1 or 2.5 cm diameter by 0.25 mm thickness) be mounted between two disks of polystyrene or lucite to insure that all positrons emitted in the decay are annihilated in the immediate vicinity of the disk source. The plastic disks should be $3/8$ " thick (0.95 cm) by either 3 cm or 4.5 cm diameter, depending on which size copper disk is to be used. The resulting sandwich will provide approximately 1 gram/cm^2 of plastic on all sides of the copper disk. The source sandwich is to be mounted on the central axis of a 3" diameter by 3" cylindrical NaI detector with the copper disk at a distance of 3 cm from

the top surface of the NaI crystal. To accomplish this it will be necessary to determine the distance from the top surface of the detector to the outside of the detector can. In present commercial detectors this distance may vary from 2 to 4 mm.

With the source mounted in this manner a pulse-height spectrum of the gamma radiation emitted in the decay of Cu^{62} should be obtained. It is assumed that this measurement will be made on a modern multi-channel analyzer incorporating an automatic live-time correction circuit. For the purpose of the decay correction, the mid-point of the counting interval will be used. It will be necessary to consider the difference between real clock time and live time in making the decay correction. A typical pulse-height spectrum of Cu^{62} is shown in Fig. 1. To obtain a value which closely approximates the disintegration rate of the sample, the photopeak outlined in the Gamma-ray Spectrum Catalogue¹ will be used. An estimate of the contribution to the 0.511-MeV photopeak from the bremsstrahlung should be made as indicated in the figure and subtracted. The "photopeak area" is then obtained by summing the counts in all peak channels. For this purpose the photopeak is defined as a symmetrical shape with the low-energy side of the peak the mirror image of the shape on the high-energy side. This concept is illustrated in the accompanying figure along with a demonstration of a graphical technique for imposing symmetry. The disintegration rate of the source will then be given by the following relationship:

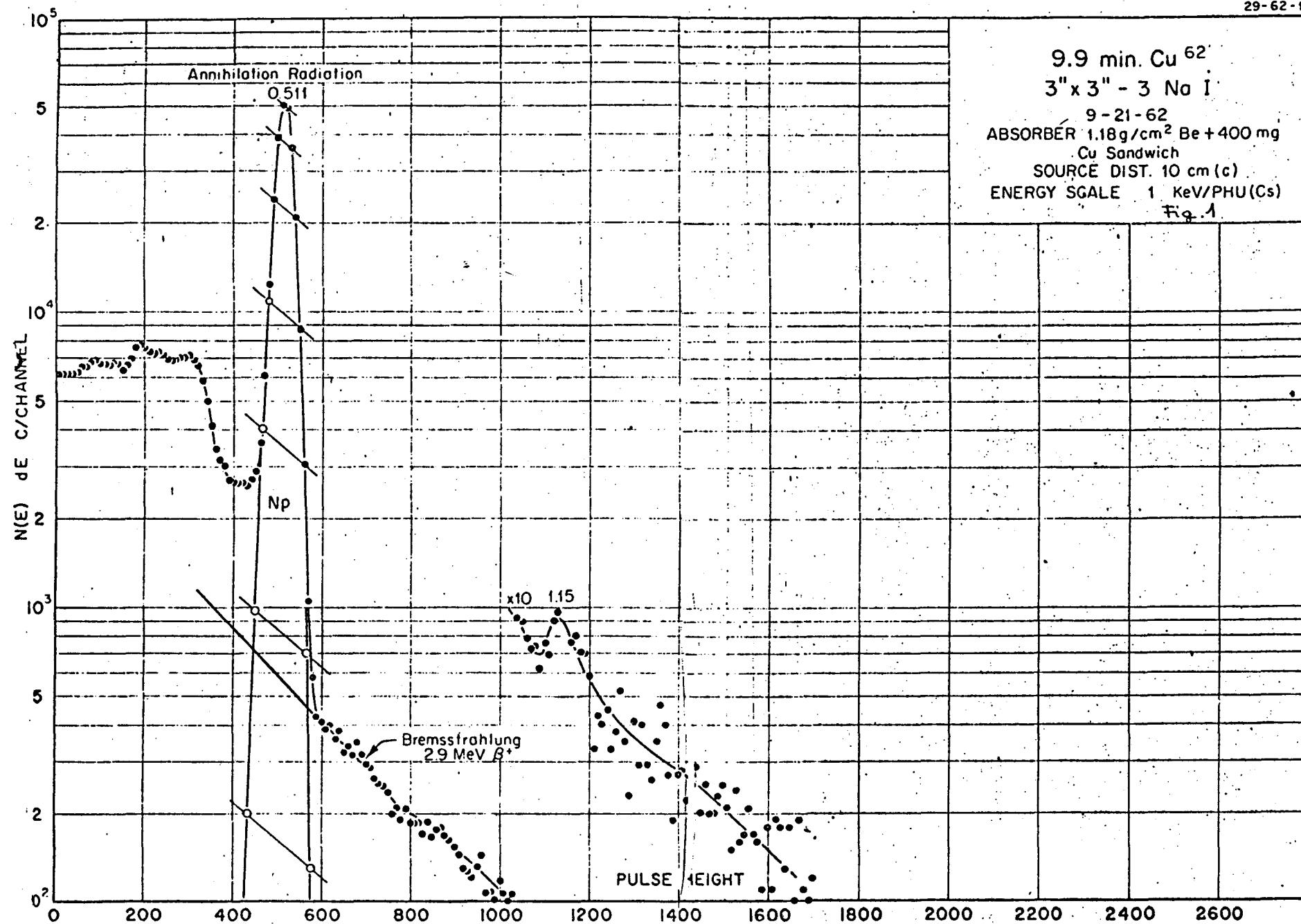
$$N_o = \frac{N_p}{P \epsilon A q}$$

where N_p is the photopeak area in counts/min, ϵ is the calculated efficiency for the source-detector geometry being used, A is an absorption correction for the plastic absorber and detector can, q is the branching ratio for the 0.511-MeV annihilation

radiation, and P is the experimental photopeak efficiency for these conditions. To simplify this procedure the quantity $1/P \epsilon A_q$ has been calculated for this experiment. To obtain the disintegration rate for the sample at the time of measurement one need only to multiply this factor by the photopeak area. Although some simplifying assumptions have been made in this calculation, the result should be accurate to within $\pm 5\%$.

	<u>1 cm diameter disk</u>	<u>2.5 cm diameter disk</u>
$1/P \epsilon A_q$	8.591	8.703

-
1. R.L. Heath, "Scintillation Spectrometry Gamma-ray Spectrum Catalogue," U.S. AEC Report IDO-16880 (1964). This document is available from the Clearinghouse for Federal Scientific and Technical Information, National Bureau of Standards, U.S. Department of Commerce, Springfield, Virginia.



Je voudrais simplement faire quelques commentaires sur cette convention. Le matériau (disque de cuivre) lui-même n'a posé aucun problème; tout le monde a été d'accord pour utiliser le cuivre, en particulier parce que cet élément possède une courbe de section efficace d'activation pour la réaction $^{63}\text{Cu} (n,2n) ^{62}\text{Cu}$ tout à fait comparable à celle de l'oxygène 16 et qu'elle permet donc une bonne dosimétrie à cette énergie des neutrons. Deux diamètres ont été choisis, simplement parce qu'un seul n'aurait pas pu obtenir l'approbation de tout le monde. Le temps d'irradiation n'a guère soulevé de discussion. Le temps de refroidissement a été choisi égal à au moins une minute, de manière à laisser décroître éventuellement l'azote 16 qui peut se trouver, dans le disque de cuivre après l'irradiation, provenant de l'oxygène. Les résultats de la mesure de l'activité de ce disque de cuivre ont été normalisés en nombre de désintégrations par minute et par gramme de cuivre. Ce résultat ramené à l'instant de fin d'irradiation, par calcul, évidemment. Ceci est donc la convention telle qu'elle est écrite et telle qu'elle a été signée par une centaine de personnes. Nous pourrions discuter, si vous voulez, ensuite. Je crois, qu'il serait utile de normaliser les distances entre la cible et ce disque, et nous en avons parlé effectivement quand nous en avons discuté à College Station, mais ces indications ne figurent pas dans le texte de la convention. Les distances que nous avons normalisées entre nous (donc, verbalement) sont : 1/2 cm, 1 cm, 5 cm et 10 cm. En ce qui concerne la mesure, il n'y a évidemment absolument aucun impératif puisque le résultat est exprimé en nombre de désintégrations par minute et par gramme de cuivre. On peut donc utiliser le système de mesure que l'on désire.

Cependant, RUSSEL HEATH a accepté de joindre à cette convention la normalisation qu'il utilise pour les mesures spectrométriques. Il recommande d'utiliser un cristal 76 par 76 mm et d'opérer à une distance de 3 cm. Il recommande également d'utiliser un écran de matière plastique (d'épaisseur 0,95 cm) de manière à avoir un rendement de conversion de $\beta +$ en gamma aussi bon que possible. Diamètre de cet écran : les recommandations sont : 3 ou 4,5 cm suivant que l'on utilise un diamètre de disque de cuivre de 1 cm ou de 2,5 cm.

Voilà l'essentiel de cette convention. Je crois qu'il est important et intéressant d'ouvrir la discussion sur ce point.

Monsieur REIFENSCHWEILER

Ich möchte erwähnen, dass wir eine gleichartige Methode zur Standardisierung der Neutronenausbeute verwendet haben, und soweit mir bekannt ist, hat auch Herr LOMER die Aktivierung von Kupfer zur Standardisation der Neutronenausbeute verwendet. Wir haben allerdings eine längere Bestrahlungsdauer gewählt, nämlich 10 Minuten. Ich glaube, dass dies besser ist, denn nach 10 Minuten hat man die Hälfte der Sättigungsausbeute erreicht und der Anstieg der Ausbeute mit der Zeit ist dann geringer, sodass eine kleine Ungenauigkeit in der Bestrahlungsdauer einen geringeren Einfluss auf die Genauigkeit der Messung besitzt. Ausserdem scheint es mir günstiger, eine grössere Dicke für die Kupferscheiben als 1/4 mm zu verwenden, nämlich 2 mm oder mehr. Die Sättigungsdicke für 2,9 MeV Positronen, die bei dieser Reaktion ausgesandt werden, beträgt etwa 2 mm, wenn man die Kupferscheiben also so dick macht, dann spielt eine kleine Differenz in der Dicke keine Rolle mehr. Auf diese Weise kann man Ungenauigkeiten der Messung durch Ungenauigkeiten in der Dicke der Kupferscheiben vermeiden.

Monsieur LAVERLOCHERE - PRESIDENT

Je voudrais donner quelques informations complémentaires au sujet des questions que vous venez de poser.

La précision quant à l'épaisseur n'a pas, je crois, une grosse importance, parce que le résultat est ramené à un gramme de cuivre. Le résultat est donc une activité spécifique; quant au temps d'irradiation, nous en avons parlé effectivement et le temps avait été choisi égal à une minute parce que certains craignaient que l'activité à mesurer soit trop forte, les flux augmentant sans cesse. Je suis d'accord sur le fait qu'un temps d'irradiation de 10 minutes est plus précis qu'un temps d'irradiation de 1 minute.

Monsieur SPEECKE

Etant tout-à-fait d'accord avec la convention proposée, il y a une chose qui m'a assez étonné au début, c'est d'exprimer un flux de neutrons en coups de désintégration de cuivre 62. Je ne vois qu'une raison, c'est l'incertitude sur la section efficace. C'est bien cela ? Un deuxième point que je voudrais soulever, c'est la réponse de Monsieur LAVERLOCHERE à la question de Monsieur REIFENSCHWEILER: l'idée d'irradier 10 minutes était certainement nécessaire quand on disposait d'un flux de 10^6 neutrons/cm² seconde. Mais je ne vois pas très bien les compteurs qui pourraient suivre une activité telle qu'on obtiendrait avec un flux d'au moins 10^8 en irradiant 10 minutes. J'ai l'impression qu'à ce moment-là on devrait employer un temps de refroidissement d'une heure, ou quelque chose de ce genre là, ce qui introduirait, en même temps, la même erreur que Monsieur REIFENSCHWEILER voulait éviter en irradiant 10 minutes.

Monsieur LAVERLOCHERE - PRESIDENT

Il est tout-à-fait exact que c'est l'incertitude sur la section efficace qui nous a empêchés d'exprimer ce résultat autrement. Nous avons discuté plusieurs heures sur le principe même de cette mesure, et nous craignons de devoir discuter encore plusieurs heures pour pouvoir tomber d'accord sur une valeur de section efficace - ce qui ne nous paraissait pas absolument nécessaire -.

Monsieur MORGAN

I should like to point out one critical factor which should be added to the other conditions and that is the angle at which the neutron flux is measured. The 90° 14 MeV neutron flux cross section is the best known and is 550 millibarns plus or minus about 10% . If the measurement is made at 0° energy then is about 14.8 MeV the cross section is more like 960 millibarns so one should state also the angle.

Monsieur LAVERLOCHERE - PRESIDENT

Oui, mais l'objectif était avant tout de mesurer le flux à l'emplacement où l'utilisateur place son échantillon. C'est avant tout une mesure pratique, et non pas une technique de physique nucléaire.

Monsieur PERKIN

I would like to ask what accuracy is going to be quoted for neutron fluxes measured in this way. Somebody has just said one or two percent. I would not believe that.

Monsieur WAINARDI

Dr. Heath has now sent a picture of the suggested physical layout of the counting arrangement to us for inclusion in the proceedings of the Texas meeting. I will send a copy of that diagram to you if you don't have it - and Mr.LAVERLOCHERE still has a copy. I might mention that basically Mr.LAVERLOCHERE and Dr.ANDERS are the chief architects of this document and if you have any suggestions for modifications these are the two gentlemen that you need to contact, but even if you can succeed in convincing them. I'm afraid that you have a very difficult task because there are about a hundred other people who have signed the original document. Now I asked about this question of the Omission of the standard distances. I asked to Dr.ANDERS this question in Chicago Tuesday and he said, and I think there was some other feeling on this point, that there was really no benefit to just list four distances. You could put it at any distance to which you chose to measure the flux and so on this basis they said well well leave this out. I think what's going to happen under the circumstances is that people who use 14 MeV activation analysis will use this convention rather routinely but I agree entirely with Mr.LAVERLOCHERE that this is not a tool for physicists, but is rather a tool for the users of 14 MeV fluxes. Thank you.

Monsieur LOMER

As Dr. REIFENSCHWEILER mentioned we have been using copper activation for quite a number of years at SERL and Mr.S.D.L.H.WOOD who has done a lot of work on this, I think, was at Texas and took some part in arriving at this convention.

The only point I thought that I might make is in answer to Dr. REIFENSCHWEILER, concerning the radiation time of 1 minute as opposed to 10 minutes. I think like ourselves he has probably got used to having steady neutron output from sealed-off tubes. Of courses with accelerators you have to do a very fast measurement.

Monsieur LAVERLOCHERE -- PRESIDENT

C'était effectivement un problème en ce qui concerne le choix du temps d'irradiation. Nous souhaitons avoir un temps suffisamment court pour éviter l'effet des fluctuations de flux pendant l'irradiation.

Monsieur CRISTALLER

Ich möchte doch Herrn REIFENSCHWEILER noch etwas antworten. Er hat gesagt, dass es besser sei, dünne Kupferscheiben zu nehmen, (interrupt.) Entschuldigung, dann habe ich ihn wohl falsch verstanden, ich würde auch sagen, man sollte ruhig dicke Scheiben nehmen, es kommt nicht darauf an, weil man nicht die Positronenstrahlung zu messen braucht, wenn man ein Natriumjodidkristall nimmt, sondern natürlich die Gammastrahlung. Wir benutzen bei uns in Karlsruhe, am Isochronzyklotron ebenfalls Kupferscheiben; um vielmehr für Zwecke der Strahlenschutzmessungen, Flussmessungen von schnellen Neutronen durchzuführen. Wir benutzen dort ein Koinzidenzspektrometer mit zwei Natriumjodidkristallen, was den grossen Vorteil hat, dass man unter Umständen sehr hohe Flüsse messen kann, was ja hier wohl auch zur Debatte steht. Darum würde es auch nicht schaden, wenn man die Belichtungszeit, die Bestrahlungszeit, auf 10 Minuten erhöht, weil man mit Hilfe der Koinzidenzmethode ohne weiteres

auch hohe Aktivitäten/verkräften kann und nicht etwa eine Stunde warten muss zum Abklingen, bis man die Aktivität wieder messen kann.

Monsieur PAULY

Le fait est que le flux de neutrons décroît très rapidement, si l'on s'éloigne de la cible (x) : Si l'on utilise un disque de cuivre trop épais, on a du mal à définir exactement la position à laquelle se rapporte le flux mesuré.

Monsieur FRETWURST

Wurde bei der Festlegung der Bestrahlungsdauer berücksichtigt, dass bei der Bestrahlung von natürlichem Kupfer auch das durch die (n,2n)-Reaktion am Cu^{65} gebildete Cu^{64} zur Gesamtaktivität beiträgt, zumal der Wirkungsquerschnitt dieser Reaktion um etwa einen Faktor zwei grösser ist als der der Reaktion $\text{Cu}^{63}(\text{n},2\text{n})\text{Cu}^{62}$?
Bei extrem hohen Neutronenflüssen und einer Bestrahlungsdauer von 10 Minuten könnte sich eine Aktivität des Cu^{64} durchaus bemerkbar machen, was eine unnötig lange Auszählzeit der aktivierten Probe zur Folge hätte.

Monsieur REIFENSCHWEILER

Wir haben bei unseren Messungen, bei denen wir 10 Minuten bestrahlt haben, nie eine Störung durch die Aktivität, die aus Cu^{65} entsteht, feststellen können.

- (x) Conf.: F.Girardi, J.Pauly, E.Sabbrone,
Dosage de l'oxygène dans les produits organiques
et les métaux par activation aux neutrons de 14 MeV,
rapport EUR 2290 f, 1965.

Zur Frage der Dicke möchte ich nun doch noch folgendes sagen . Wir haben die Aktivität des Kupfers nicht über die Gammastrahlung, sondern über die Positronenstrahlung gemessen. Ich glaube, die Gruppe von Herrn LOMER hat dies ebenfalls getan. Dann kann man eben dadurch, dass man die Dicke der Scheiben grösser macht als die Sättigungsdicke, kleine Differenzen in der Dicke ausschalten. Verwendet man jedoch die Messung der Gammastrahlung, so liegt der Fall natürlich wesentlich anders und man kann eine genaue Standardisierung dadurch erhalten, dass man das Kupfer einfach wiegt.

Monsieur FLEISCHER

What sort of detectors does one use either for the gammas or the betas ? I'm not too familiar with the problem of measuring a 14 MeV flux but as a nuclear physicist I've always found it very difficult to measure extremely counting rates with a standard sodium iodide detector or even a coincidence set up when there are more than 10^6 disintegrations per second.

Monsieur LAVERLOCHERE - PRESIDENT

En ce qui concerne la mesure de l'échantillon de cuivre, la convention du Texas n'impose rigoureusement rien. Elle recommande simplement des dispositifs qui sont connus. Cette convention a essayé simplement de choisir les dimensions de ce dosimètre de cuivre, dimensions telles que l'activité ne soit ni trop forte, ni trop faible pour la plupart des utilisateurs. Il se peut fort bien que ce qui a été choisi ne convienne pas pour certaines séries d'expériences, soit

parce que cette activité sera trop forte, soit parce qu'elle sera trop faible. Dans ce cas, peut-être, on sera amené à reviser certaines des dimensions qui ont été données. C'est l'expérience qui donnera des indications. Pour le moment, ce que nous avons plutôt convenu dans cette convention de College Station, c'est de tenter d'utiliser cette méthode et de voir, à l'expérience, quels vont être ses défauts. C'était un peu la position que nous avions lorsque nous avons choisi cette définition et les caractéristiques.

Monsieur PAULY

Nous avons bien observé que, si on laisse décroître une cible de cuivre irradié, on obtient une quantité visible de cuivre 64. Il faudrait donc, pour ne pas avoir d'interférence, qu'il y ait aussi un temps de décroissance maximum fixé.

Monsieur LAVERLOCHERE - PRESIDENT

Oui, bien sûr. Le risque de mesurer une activité du cuivre 64 n'est pas absolument négligeable. On a pensé qu'il était tout de même très faible, et que ceux qui utilisaient cette méthode, par ailleurs, savaient mesurer une radioactivité et connaissaient la période du cuivre 62, que nous n'avons pas précisé de conditions en ce qui concerne le temps maximum de refroidissement.

Monsieur SMITH

I have made quite a few biological irradiations at the large Los Alamos Van de Graaff. All the fluxes have been measured using either Uranium 235 or 238 in an ionization chamber. The neutron flux was integrated during the

measurement with no difficulty unless the flux was so low that there was not sufficient count for the accuracy desired. The range of accuracy was from 5 to 10% depending on how much trouble the experimenter wished to go to. Has anyone else used this technique for the type of irradiations that your people are interested in ?

Monsieur FLEISCHER

We've measured 14 MeV neutron fluxes with several new liquid scintillators which are available that have an extremely high neutron-to-gamma sensitivity. Why not make an active measurement like this rather than a passive measurement in activating a piece of copper ?

Monsieur SPEECKE

I would suggest to Dr. WAINARDI and Mr LAVERLOCHERE to explain to this meeting that this convention has been established at the Activation Analysis Symposium in Texas for activation analysis people using 14 MeV neutrons.

There is a need for a method easily adaptable to all laboratories, even those not familiar with ionization chambers, coincidence measurements, etc.

In the idea of the sponsors it will then be possible to publish results and state an obtained sensitivity in an analysis procedure, for a really available flux, be it at 0,5 or 20 cm distance from the target. In this way other people using the same analytical method can then calculate their own possibilities with their experimental set-up. This is exactly what happens in reactor neutron activation.

I believe this is one of the points missed in this discussion.

I hope Dr. WAINARDI will confirm this.

Monsieur WAINARDI

The point of this whole convention was that the standardization is done in exactly the same way we do a analysis. We activate something, put it near a sodium iodide detector largely in the counting geometry of Heath and we count it, this is designed to require no more equipment than most of us have and to give some way for intercalibration between laboratories. The difficulty, the activation analysis literature which is certainly the largest used literature on neutron generators is that every one was determining fluxes in a different way. Now I think it is interesting that the people who gathered to establish this convention came from 26 different countries, they are representing virtually all of the activation analysis in the world there is no disagreement what ever in the adoption of the convention in general you know its a fact as far the leading one when the convention was adopted it was signed by all the important laboratories and I frankly believe if I may say to you I think you are spending more time on this subject than is worth of you because if you don't choose to adopt it its your opportunity you don't have to. It is not mandatory but for those of us who needed it, it served the purpose if you chose to adopt another one good, but it is in use now and is just a standard way of doing something not a good way or a bad way just a way that most of us who needed it can have it. I call to your attention the fact that the details of the convention are available from Mr.LAVERLOCHERE and that it will also be published in the proceedings of the conference but a brief résumé was published in Nucleonics this month is available to some of you. I believe this is a fairly accurate résumé but the detailed word for word convention is to be published in the proceedings and can be photocopied and can be sent to you, if you wish to refer to them. Thank you.

Monsieur LAVERLOCHERE - PRESIDENT

Je remercie le Docteur WAINARDI de son intervention. Il était souhaitable, je crois, que l'on en discute de cette convention dans une séance comme celle-ci. Il est certain que nous ne la changerons pas tout de suite, s'il faut la changer un jour. Mais pour préciser l'esprit dans lequel elle a été faite, je voudrais simplement vous rappeler les quelques lignes qui constituent son introduction : " Dans le but de faciliter des comparaisons interlaboratoires de flux, et d'établir une base commune pour la détermination des flux de neutrons rapides, utilisés en analyse par activation. La présente convention a été adoptée par les personnes soussignées." Vous voyez donc qu'il s'agit d'une part d'intercomparaison entre laboratoires, non pas de mesures absolues; et, d'autre part, d'utilisation en analyse par activation - ce qui réduit peut-être son champ d'application et ce qui, en tout cas, définit bien le type d'utilisation, le type d'utilisateur.

Monsieur MORGAN

I've just one final comment. Although there was seen to be no a priori reasons for selecting these sizes, someone made a good guess. On the basis of true calculations which have just made, if this disc were placed one centimetre from the target an activity of four times 10^5 disintegration per minute per gram would be obtained with this sample weighing 0,7 gm. in a flux of 8.8×10^9 per cm^2 per second.

Monsieur GOVAERTS

Trois choses. Primo : je n'étais pas à la conférence du Texas. Deuxièmement : si j'y avais été, j'aurais donné

pleinement mon accord à cette convention. Troisièmement : il faut être prudent en ce qui concerne le mot " recommandation ". Le sens de "recommandation" est pris, par le législateur, dans une direction bien déterminée. Et si on complète la convention telle qu'elle a été faite, je pense qu'il faut être très prudent et peut-être utiliser un autre mot que "recommandation".

Monsieur LAVERLOCHERE - PRESIDENT

Merci de ces suggestions. Nous allons avoir, maintenant, une interruption de dix minutes seulement, car la deuxième moitié de cette matinée est également chargée.

INTERRUPTION

Monsieur LAVERLOCHERE - PRESIDENT

Nous allons continuer le programme en discutant des autres cibles tritiées, et tout d'abord, des nouvelles cibles métalliques.

La première communication sur ce sujet est celle de Madame BREYNAT et de Monsieur DUBUS, du Centre Nucléaire de Grenoble. Cette communication a pour titre : " Quelques expériences sur les cibles tritiées, utilisant des terres rares ". Elle est présentée par Monsieur DUBUS.

Monsieur DUBUS

Monsieur le Président, Mesdames, Messieurs, il a été beaucoup question, depuis le début de ce Colloque, de cibles tritiées métalliques, utilisant des terres rares et, en particulier, de l'erbium. Les irradiations en neutrons de 14 MeV, réalisées à la section des accélérateurs de Grenoble,

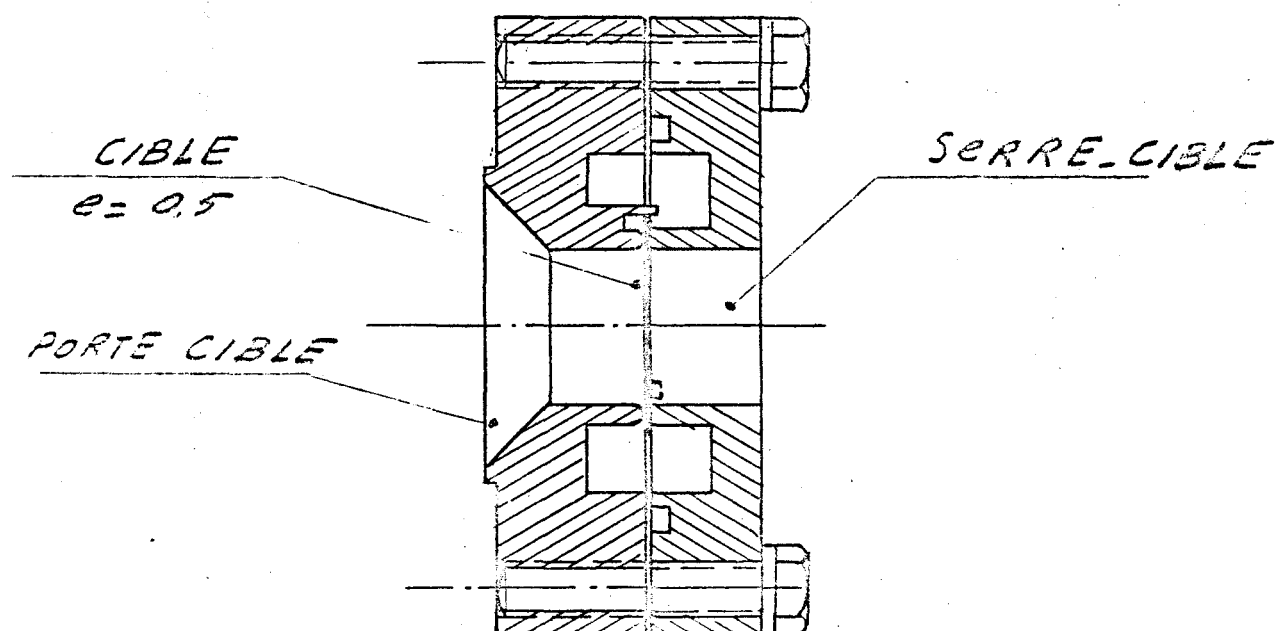
durant ces derniers mois, ont nécessité l'utilisation de 40 cibles de titane et d'erbium tritiées. Les rendements en neutrons et les demi-vies de ces deux types de cibles ont ainsi pu être comparés. Les deutons sont accélérés sous une haute tension de 400 kV. Le faisceau n'est pas défléchi et il n'y a donc pas de séparation des ions atomiques et moléculaires. Des sondes tournantes, placées près de la cible, permettent de vérifier que l'étendue et l'homogénéité du faisceau restent constantes au cours des essais. Un piège à -200 V empêche l'émission d'électrons secondaires et permet la mesure du courant-cible.

Le schéma du porte-cible (figure 1) indique que le refroidissement est assuré par une circulation d'eau annulaire, ce dispositif permettant de placer un échantillon immédiatement au contact de la face arrière de la cible. L'étanchéité au vide est assurée par le serrage métallique du support d'argent. On évite ainsi la présence de joints, au voisinage de la cible. Par ailleurs, un piège à fréon limite la diffusion des vapeurs d'huile de la pompe dans le tube accélérateur. La température de la cible est mesurée par un thermocouple placé au contact de la face arrière.

Le flux de neutrons instantané est mesuré par une chaîne à protons de recul. L'irradiation d'échantillons de fer donne une autre mesure de ce flux, intégré sur des périodes d'une demi-heure.

Au cours des essais, des valeurs différentes de haute tension et d'intensité de courant ont été utilisées afin de faire varier la température de la cible. Le tableau suivant indique ces différentes valeurs.

Figure 1



. ENSEMBLE PORTE.CIBLES.

FIG. 1

Tension d'accélération KV	Intensité faisceau μ A	Puissance W / cm ²	Température cible ° C.
400	1000	160	320°
400	850	~140	220°
400	450	~ 70	160°
300	850	100	190°
300	600	~ 70	160°

Tableau : Conditions d'utilisation des cibles tritiées.

Les débits de neutrons, au début de chaque essai, sont du même ordre de grandeur pour les cibles d'erbium et de titane : de $3,10^{10}$ à 10^{11} neutrons/4 [seconde, suivant l'épaisseur et la concentration en tritium de la cible. Le rendement est donc à peu près identique pour les deux types de cibles. Ceci s'explique par le fait que les rapports tritium sur métal étaient équivalents pour les deux types. Nous n'avons pas encore pu obtenir de cible d'erbium ayant une concentration en tritium plus importante. LARGE et HILL (Baldock) ont cité dans une récente publication un rapport isotopique de 2,8, pour des cibles d'erbium. D'autre part, cette publication rend compte d'une expérience réalisée avec un faisceau de 10μ A. D'après ce que nous a dit à ce sujet Monsieur le Professeur BESSON, on peut se demander si de telles cibles résisteraient à des puissances plus importantes.

A titre indicatif, une mesure de flux a été effectuée conformément à la convention dont on a parlé tout à l'heure. Une pastille de cuivre de 25 centième de mm. et de 10 mm de diamètre a été activée pendant une minute à un cm sous la cible. On a obtenu le chiffre de $2,7 \cdot 10^7$ désintégrations par minute et par gramme de cuivre pour un flux de $2,25 \cdot 10^{10}$ neutrons/4 \square par seconde. Le cuivre était placé à 0 degré par rapport au faisceau de deutons; avec une valeur de la section efficace de 960 millibarns, cela correspond à un flux de 10^9 neutrons par $\text{cm}^2/\text{seconde}$. Pour comparer les deux types de cibles, nous avons porté sur un graphique, leurs demi-vies en fonction de leur épaisseur. (Figure 2). Les points représentatifs sont assez dispersés, mais de nombreux paramètres de la fabrication et de l'utilisation influent sur cette demi-vie et il est difficile d'en dégager une loi de variation. Nous avons constaté cependant que cette demi-vie augmente avec l'épaisseur de la couche de titane ou d'erbium. Les cibles de titane de fabrication standard ont une durée de vie, à 150° environ, nettement plus grande que celles d'erbium. A 300 degrés, les deux types semblent équivalents. La demi-vie des cibles de titane est beaucoup plus courte à 300° qu'à 150°, tandis que celles des cibles d'erbium sont peu différentes. Dans le premier cas, la température de décomposition de l'hydrure est nettement dépassée à 300°.

L'écart important observé entre les périodes des cibles de titane et d'erbium utilisées à 150° semble être dû, en partie, à une différence des modes de fabrication. Trois cibles de titane, de même fabrication que les cibles d'erbium, ont des demi-vies inférieures à celles de toutes les autres cibles de titane. Enfin, sur la figure 3, on a comparé les périodes des cibles de titane utilisées à 400 kV et 450 μA et 300 kV et 600 μA , deux séries d'essais où la puissance à dissiper sur la cible est la même. Les demi-vies mesurées dans le deuxième cas, sont

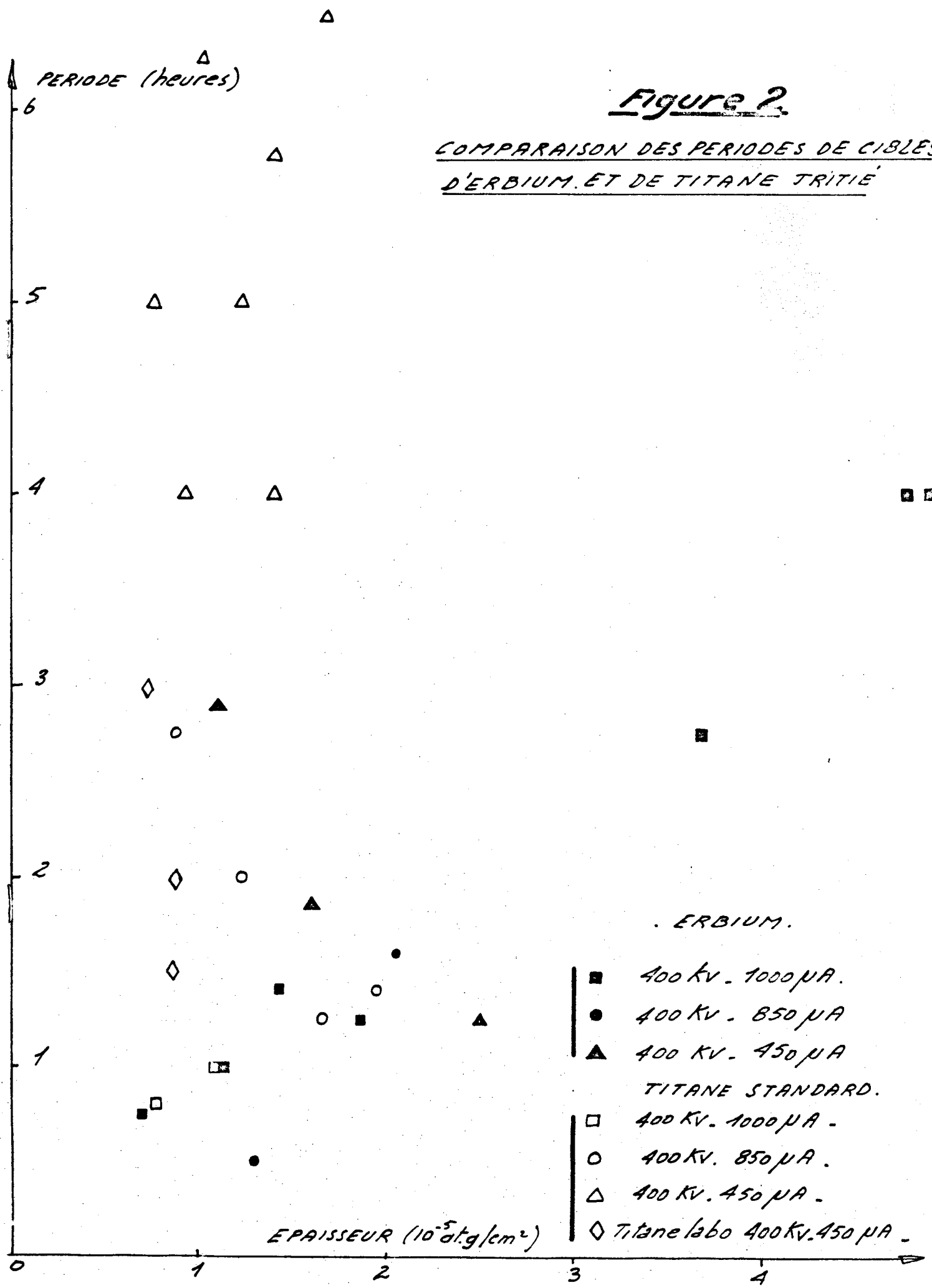
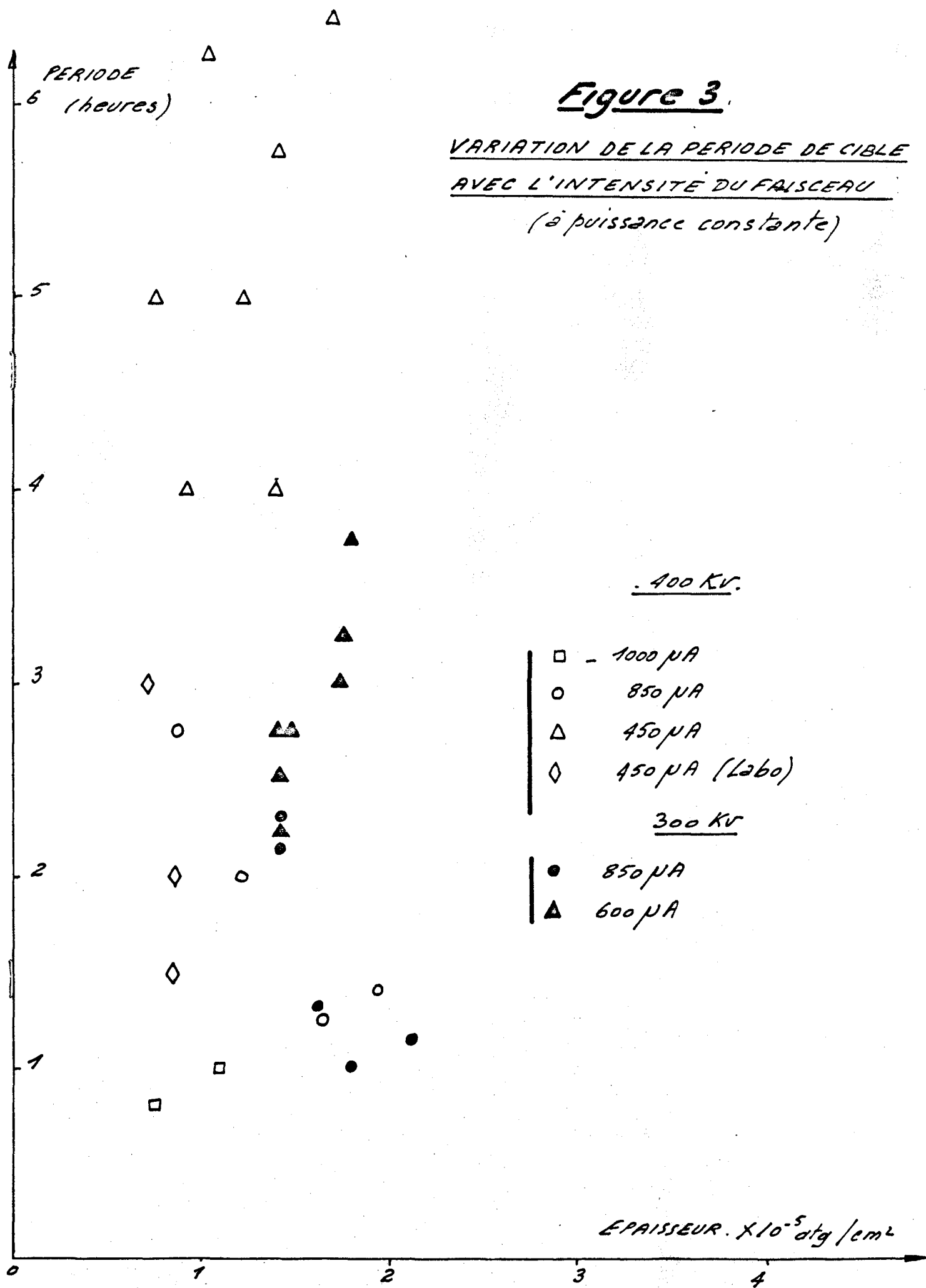


Figure 2.

COMPARAISON DES PERIODES DE CIBLES
D'ERBIUM. ET DE TITANE TRITIE'



toutes inférieures à celles mesurées à 400 kV, ce qui démontre encore que l'élévation de température n'est pas la seule cause de limitation à la durée de vie des cibles.

En conclusion, la plus grande stabilité en température de l'hydrure d'erbium apparaît dans le fait que le comportement de ces cibles n'est pas significativement différent à 150° et à 300°. Par contre, la destruction des cibles de titane est beaucoup plus rapide à 300° qu'à 150°.

Dans nos expériences, les cibles prototypes d'erbium, d'une fabrication moins sûre que les cibles standard de titane, se sont révélées moins intéressantes que ces dernières, à 150°. Par contre à 300°, c'est-à-dire pour les forts débits de neutrons, les cibles d'erbium seront probablement avantageuses, lorsque le procédé de fabrication sera mieux au point.

Il reste que, quelles qu'elles soient, les cibles tritiées ont des durées de vie limitées sous bombardement de deutons, même dans les conditions de pression et de température où le système tritium-métal offre une bonne stabilité. La détérioration des cibles doit donc être due, dans ce cas, à une autre cause qu'une instabilité chimique, probablement, en partie, à la pulvérisation (sputtering) des atomes de la cible sous l'impact des deutons. Mais les valeurs données hier par Monsieur LOMER et par Monsieur REIFENSCHWEILER, du coefficient de sputtering sont beaucoup trop faibles pour expliquer une détérioration aussi rapide de ces cibles. On peut penser que les deutons, - s'ils éjectent réellement des atomes métalliques de la cible, - provoquent aussi d'importantes perturbations internes, qui libèrent des atomes de tritium assez rapidement. Ce phénomène ne serait pas visible dans les tubes scellés où il y a sans doute reformation continue de la source tritiée, par le fait du faisceau mixte deutons-tritons. Il serait difficile de pratiquer un tel faisceau dans un tube pompé, du simple fait de la quantité de tritium qu'il nécessiterait.

La recherche de cibles tritiées de plus grande résistance devra tenir compte de ce phénomène encore mal connu.

REFERENCES

- 1.- REDSTONE et ROWLAND Nature, 201 (1964) 1115
- 2.- L.N.LARGE et H.HILL Nucl.Inst.and Meth. 34 (1965) 100
- 3.- R.ZEGHERS Note technique ACC/63-11
C.E.A. - C.E.N./G. - Mars 1963.

Monsieur LAVERLOCHERE - PRESIDENT

Je vous remercie. Nous allons tout de suite entendre la communication suivante, puisque les deux sujets sont tout à fait semblables. Cette communication est du Dr.MORGAN (Texas Nuclear Corporation) et a pour titre: "Cibles tritiées de scandium, titane, zirconium, erbium, yttrium et uranium".

Monsieur MORGAN

During the past several years, a continuing effort to obtain better tritiated targets has been under way at Texas Nuclear Corporation. A continuing check on the quality of the targets that have been produced by various manufacturers has been performed. Studies at other laboratories have been made on the distribution of the tritium throughout the targets. A large amount of data has been accumulated on the yield of the neutrons versus target loading, the half life of the target, the thickness, the target backing and target coating. In order to extend the neutron output as a function of time beyond which normally could be expected, beam dispersion or sweeping has been employed, target rotation and last but not least target rotation

with beam current feedback in order to maintain a constant neutron output. I would like to explain briefly the experimental set up used for these studies. All the targets were tested at a 150 kV bombarding energy using an RF ion source having approximately 85% atomic beam. Targets were tested using ion pumps, double trapped oil diffusion pumps and mercury diffusion pumps, which were available in the accelerator labs and in the Van de Graaff laboratories.

The beam current in this particular case was always measured with a Faraday cup with sufficient negative voltage such that electron suppression was adequate. In other instances we have used also magnetic suppression. The neutron flux was measured in general by two techniques: the first technique was a biased anthracene recoil counter placed at two meters from the target with an efficiency of a $1 - 1/2^\circ$; the second technique was the use of a proton recoil telescope with a polyethylene radiator of 200 $\mu\text{gr. per cm}^2$ placed a thirty centimeters from the target with a efficiency of $1.4 \cdot 10^{-5}$. These detectors were calibrated, using an associated particle technique, and checked additionally through copper foil activation. I might mention briefly that in the proton recoil telescope this is the counts per channel versus the channel number in a multichannel analyzer. The pulse height spectrum appears as the normal proton recoil distribution which one would encounter, the bias is always set 60% of the maximum pulse height. The anthracene crystal is 0,5 cm by 0,5 cm being a right circular cylinder. In the proton recoil telescope, which is a rather simple model, the pulse height spectrum versus channel has a peaked distribution with a bias placed mid point back of the maximum pulse height. In looking at the target using these monitors, we have the targets, the detector, a high voltage power supply, a preamplifier and amplifier which feeds the multichannel analyzer. It is operated in

the time mode and the counts per channel versus the dwell time per channel is variable. In order to ensure beam uniformity, the beam must necessarily be focussed with a gap lens in the accelerator and collimators of various sizes were used. In general these were of the order of 1/8 inch or 1/4 inch in which beam currents were passed through the collimators such that it approximated a current density of one mA per cm². In order to check the targets, which were received from various manufacturers, a random sampling of a hundred and twenty five targets was made during an interval of one year. I should like to point out that it is extremely important, as far as the production of neutrons is concerned from tritiated targets, that some sort of standardization be developed for the making of targets, as will be shown in the data there is a wide variation between targets from the same manufacturer and from different manufacturers. I think, one of the best services that the manufacturers could provide to the people that are using tritiated targets for making neutrons, is to try to clean up the method by which they make their targets.

The first figure shows the random sampling of a series of targets, five targets taken out of different batches throughout the year. This data was supplied by the manufacturers and gives the gas absorbed in cc, the activity per square inch, the weight of the titanium in mgr.per cm² and the ratio of tritium to titanium. The upper group of targets were the normally 3 to 5 curies per inch², the lower group is normally called the one-curie-per-inch² target. Certain targets produce as many neutrons as higher-activity targets and in fact we have found that some one-curie-per-cm² targets certainly can produce as many neutrons as even an 8-curies-per-cm² target. The main thing that has been gained by the total thickness is primarily in the half life. A visual observation of these targets showed that

they had a very shiny metallic appearance, there was no brown or blue discolouration, which would indicate that an oxide or nitride had not been formed. They look like good targets but as you can see there are wide variations among the targets.

In figure 2, I will show data which, was presented by Mott of the Gulf Research Corporation. This presented an activity per linear displacement, which indicates the distribution of tritium across the target surface. These graphs show that the majority of the tritium is in one area. This can be due to several things, the method of heating the target, the method of evaporation and the thickness of the sample. These conditions must be rigidly controlled by the manufacturers in order to get uniform targets. In the continuing study of the targets we have bombarded essentially every material we feel we can get tritium absorbed in and some of the data is shown in fig.3.

In this particular curve is shown titanium on copper, eight curies per inch², four curies per inch², one curie per inch² with the latter two being purchased from Amersham. The scale on the left is in arbitrary units, not fixed scale for neutron production. The curves are separated so that the relative half lives can be shown. The lower curve for the one curie per inch² has about a seventy minute half life, four curie per inch² about a eighty five minute half life, eight curie per inch² has a hundred and sixty minutes half life. These are typical of the thicker targets and show that even though the neutron yield between the one curie and the eight curie target may not be over a factor of two, the half life is certainly considerably longer and again substantiates the idea of sputtering in these materials. In figure 4 is shown different targets which considerably shorter half lives, purchased from various manufacturers. There are titanium on copper, titanium on copper with aluminium coating, a U.S. Radium target of titanium on copper, Nuclear Research Associates target of erbium on copper.

RANDOM SAMPLING FROM 125 TARGETS (UKAEA)
(5 Separate Batches Received Over 1 Year Period)

Gas Absorbed (c.c.)	Activity (curies/in ²)	Ti wt (mg)	Ti Thickness (mg/cm ²)	¹ H ³ /Ti
1.10	3.64	2.9	0.58	1.61
1.28	4.24	3.4	0.67	1.60
1.28	4.24	3.7	0.73	1.47
1.42	4.70	4.0	0.79	1.51
1.54	5.10	4.8	0.95	1.36
1.44	4.75	5.3	1.05	1.15
1.57	5.20	6.1	1.21	1.10
0.30	1.0	1.0	0.20	1.28
0.33	1.1	1.2	0.24	1.17
0.37	1.2	1.5	0.30	1.05

Note : Data supplied by Mfg.

Figure 1

Figure 2

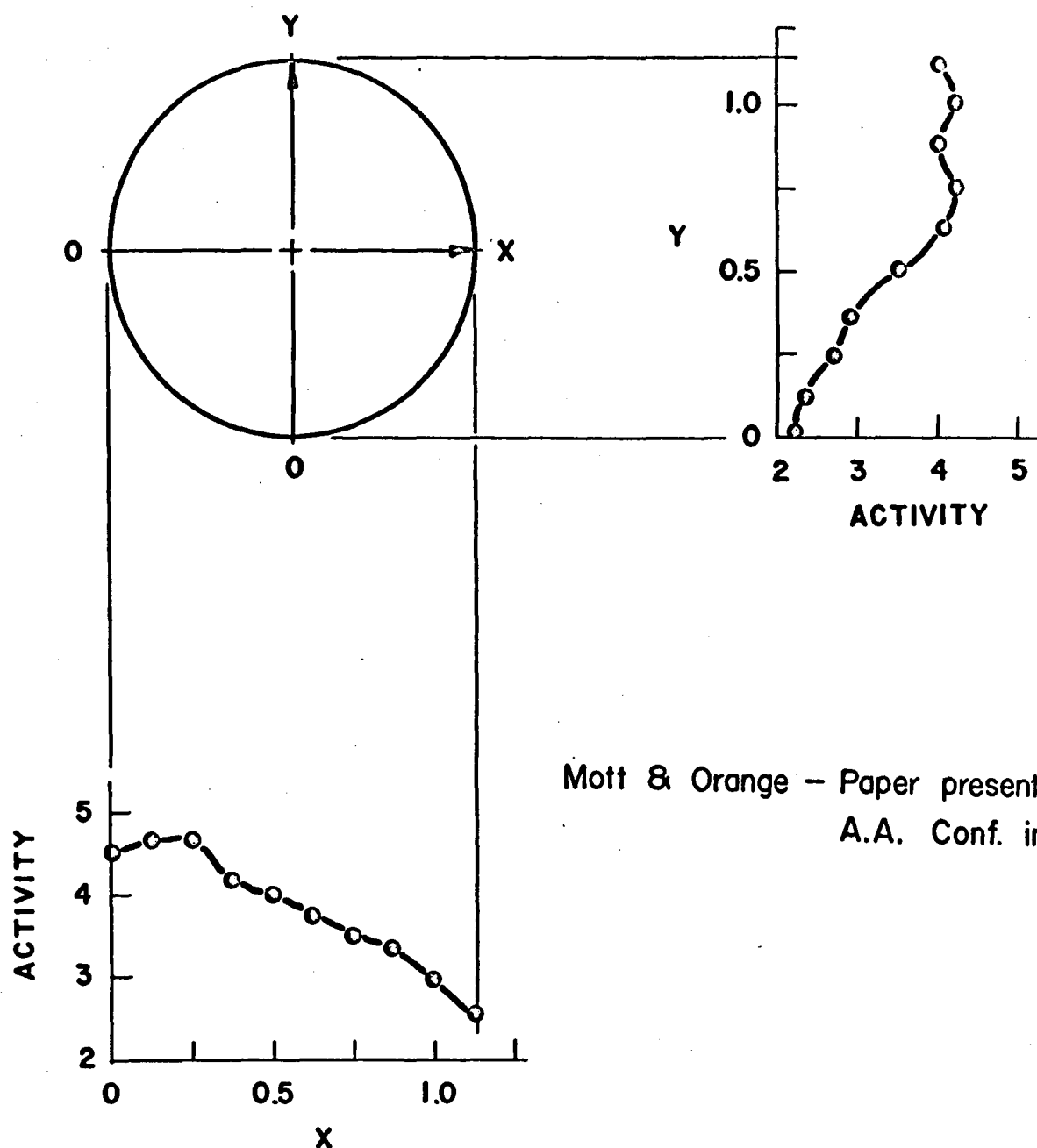
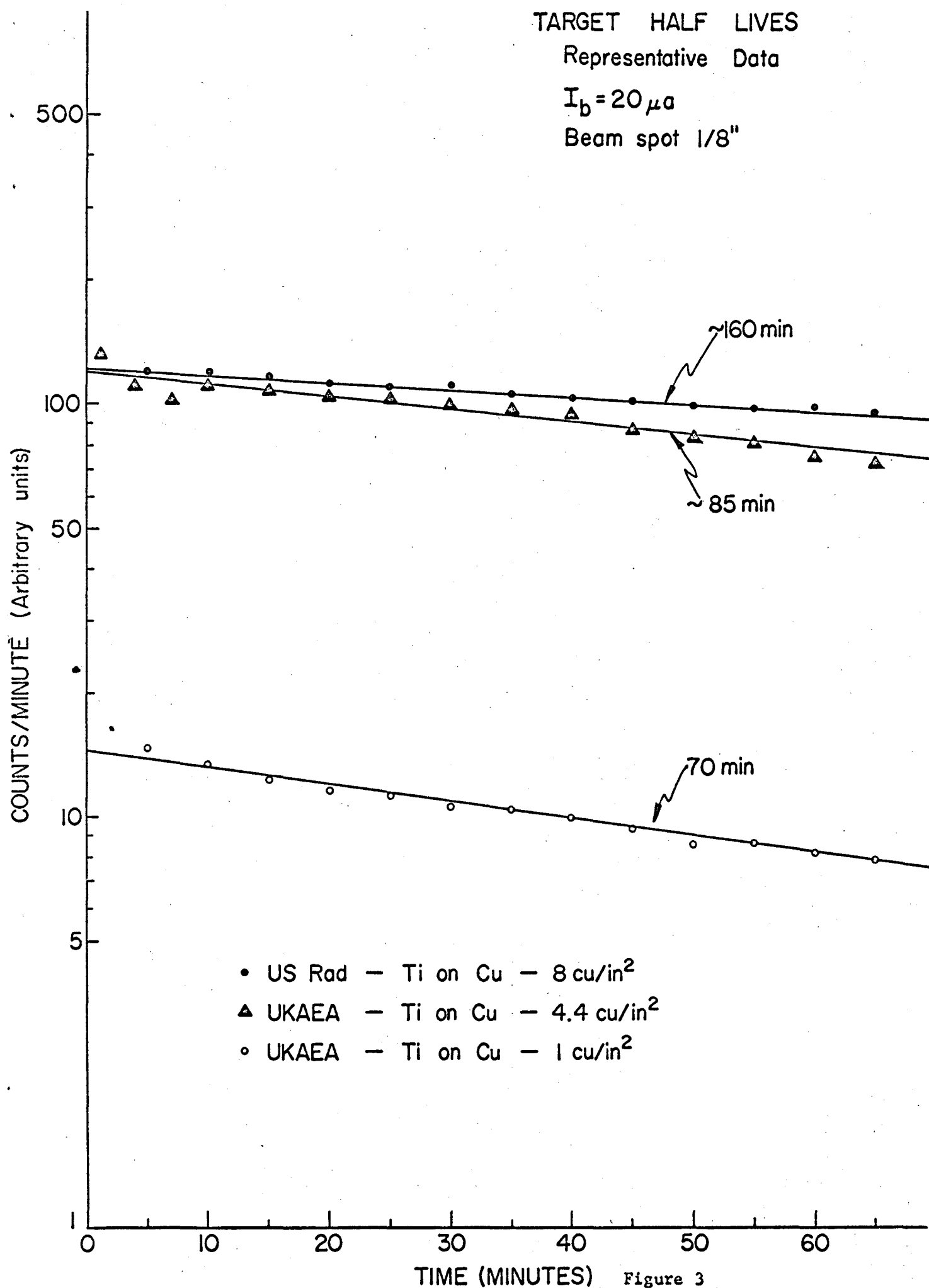


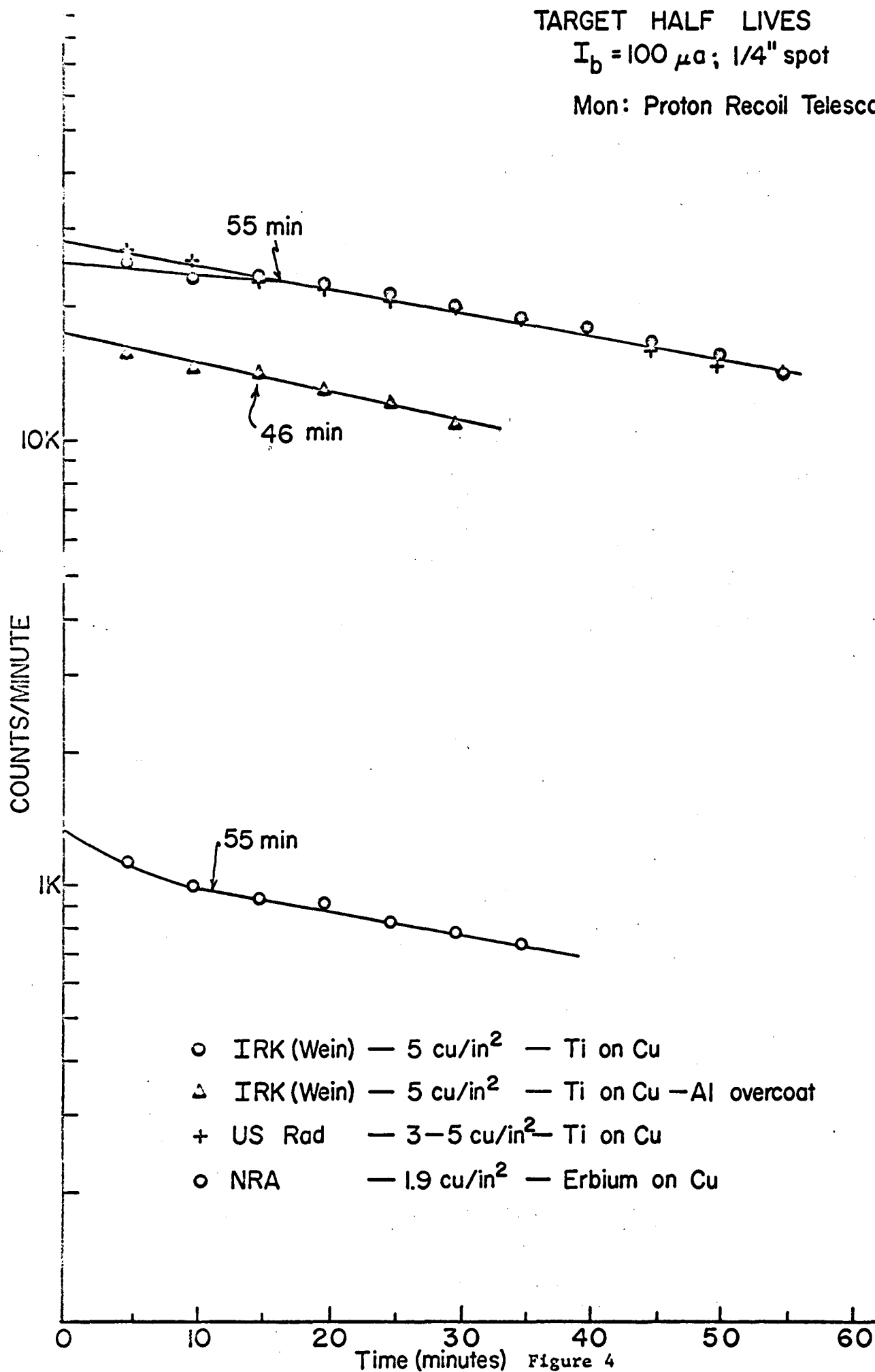
Fig. 2 Local Tritium Content Across the Surface of a Tritiated Titanium Target (Measured With a Counter Having a 1 mm Aperture)



TARGET HALF LIVES

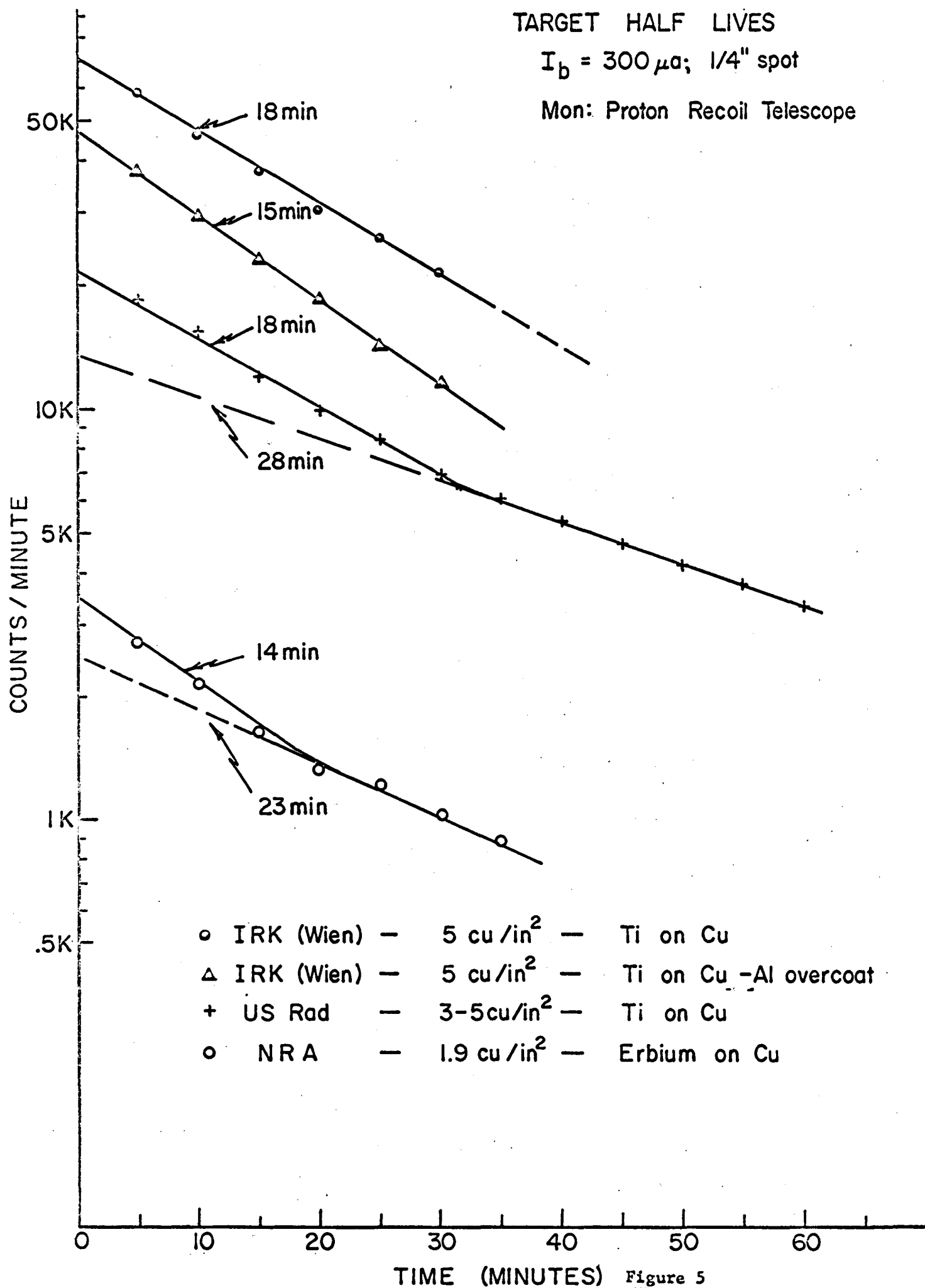
 $I_b = 100 \mu a$; $1/4''$ spot

Mon: Proton Recoil Telescope



The half lives are shown and this is for a current of $300\ \mu\text{A}$ through a one quarter inch collimator which gives an effective current density of about one mA per cm^2 . Half lives are really quite short. The yield is in absolute counts. The recoil telescope has an efficiency of about 1100 counts per second for the geometry described, and represents approximately 10^{11} neutrons per second for the four π yield. The yield from the aluminium overcoat was lower and there was essentially no difference in the half life. There seems to be at times a two component time decay of the neutron yield. If this is due to surface tritium it can come on quite rapidly and then the yield levels off. I might indicate also that from the type of measurements performed these neutrons are truly 14 MeV neutrons coming from the target. I think one must be careful in making half life measurements to make sure they are measuring only those fast neutrons from the target. In Figure 5 is shown data, again titanium on copper, titanium on copper with aluminium coating. Again is shown a U.S. Radium target of titanium on copper, a Nuclear Research Associates target of erbium on copper. These curves were run at $100\ \mu\text{A}$ per cm^2 which is certainly a decreased current density. A comparison of the half lives from figure 4 at $300\ \mu\text{A}$ shows these half lives are increased about the ratio of the beam currents. I just want to point out that the US Radium target and the top target as shown in figure 4 are almost identical on an absolute scale. The target with an aluminium overcoat is slightly less than the other targets at initial yield.

Fig.6 shows data taken for scandium on copper, erbium on copper, erbium on aluminium and erbium on stainless steel, which is a fairly thin target. A comparison of curve B and curve D with a stainless steel backing, has an extremely short half life initially and gives very little yield. The targets are quite thin, get the one encouraging thing in all of the measurements is the half life of erbium on aluminium and the scandium on the copper.



These seem to have fairly nominal half lives for a static irradiation of a target of this type.

Fig. 7 shows some targets from Nuclear Research Associates presented are erbium on copper with H^3 loadings of 1.27 curie per inch² and 1.9 curie per inch². The half lives are of the order of an hour, an hour and twenty minutes respectively.

Fig. 8 shows targets from Amersham and US Radium for titanium on copper, yttrium on copper and erbium on copper with loadings of 4 curies per cm² as nominally quoted. On an absolute scale you can see the differences in the targets. The half lives of the two lower targets are about the same as the upper target but there is a factor of six difference in the yield from two targets although they were stated to be the same.

Fig. 9 shows data taken on zirconium, yttrium and uranium targets which were obtained from ORNL. There is an initial very fast decrease from the yttrium target and then it seems to level off to a half life of twenty minutes. The uranium target has an extremely low yield compared to the other targets and also decreases rather rapidly. Zirconium on copper seems to have a fairly nominal half life.

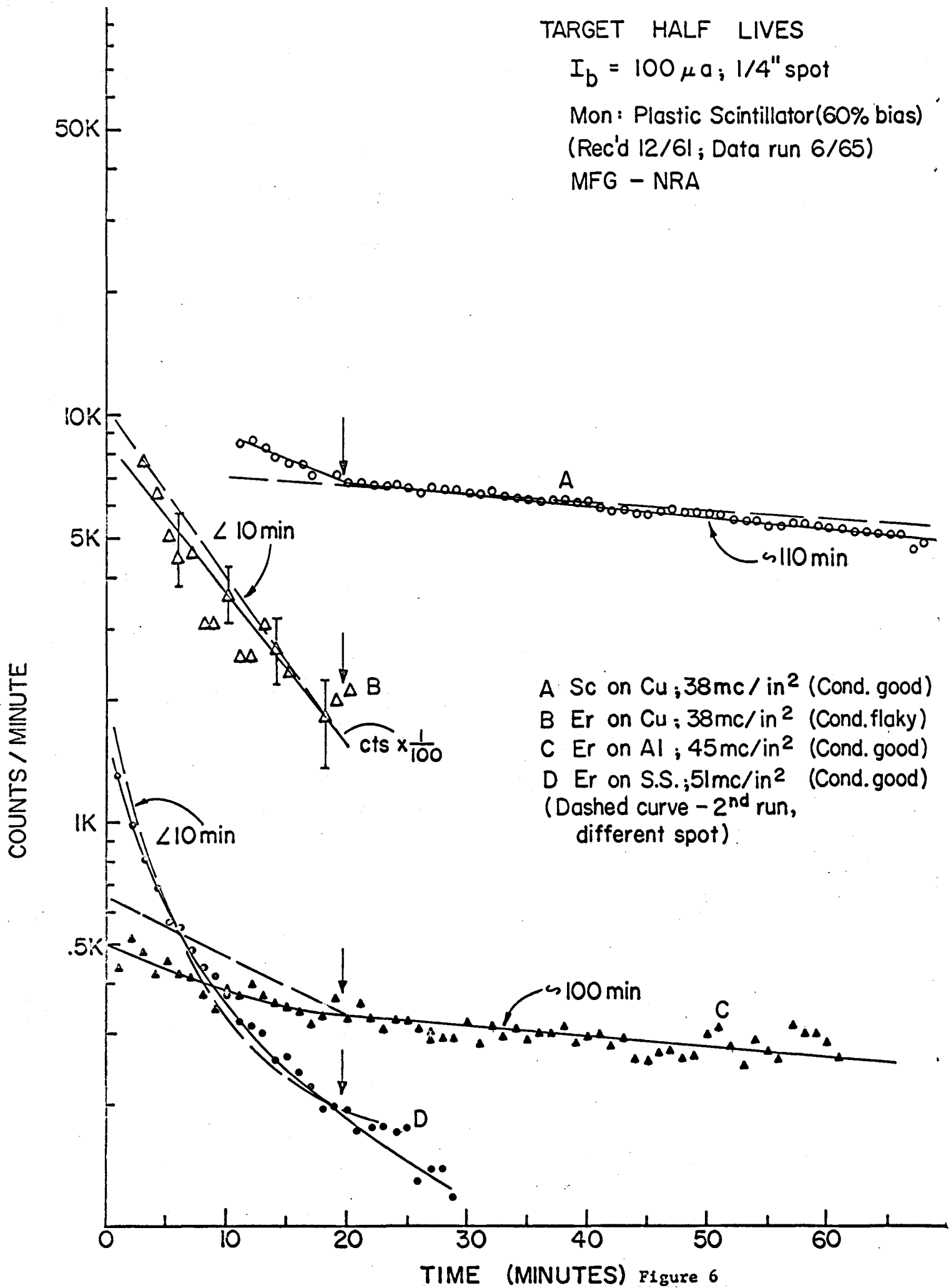
On Fig. 10, to illustrate how far we go to find a target, the cathodes out of an ion pump were used as the targets. They are operated for long periods of time and when the accelerator targets are depleted, it is assumed the tritium is in the cathode of the "ion pump". An ion pump was disassembled and the cathode cut up. The curves shown are from parts of the titanium cathode after it had been run for about six hundred hours total. The curves represent two different spots on the same cathode which shows that the tritium is very localized. This is given on an absolute scale which indicates that the tritium is actually located in the center place, it is only of the order

TARGET HALF LIVES

$$I_b = 100 \mu a; 1/4" \text{ spot}$$

Mon: Plastic Scintillator (60% bias)
(Rec'd 12/61; Data run 6/65)

MFG - NRA



TARGET HALF LIVES

Mfg - NRA

(recieved 12/61)

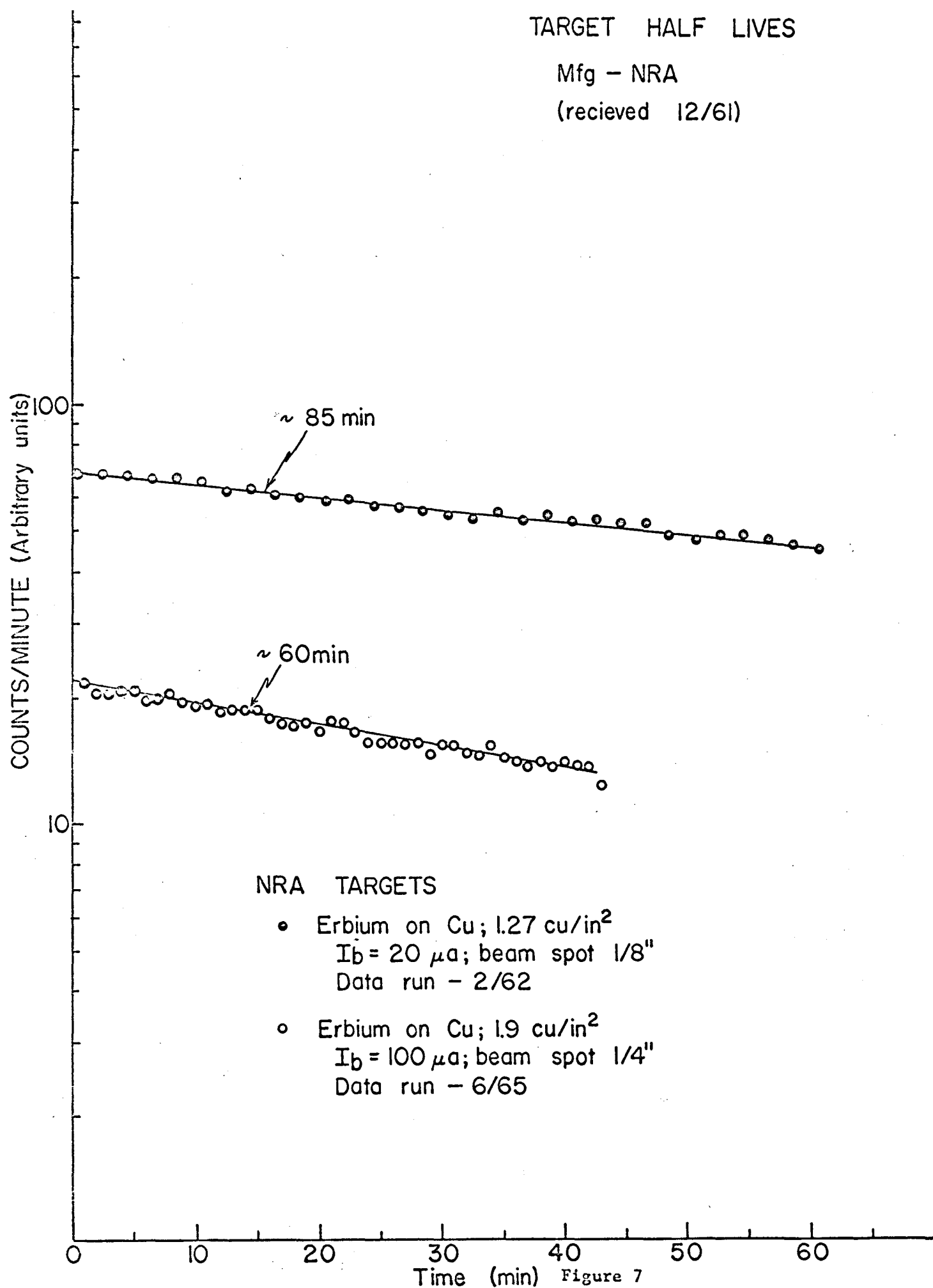


Figure 8

TARGET HALF LIVES

$$I_b = 20 \mu a$$

Beam spot 1/8"

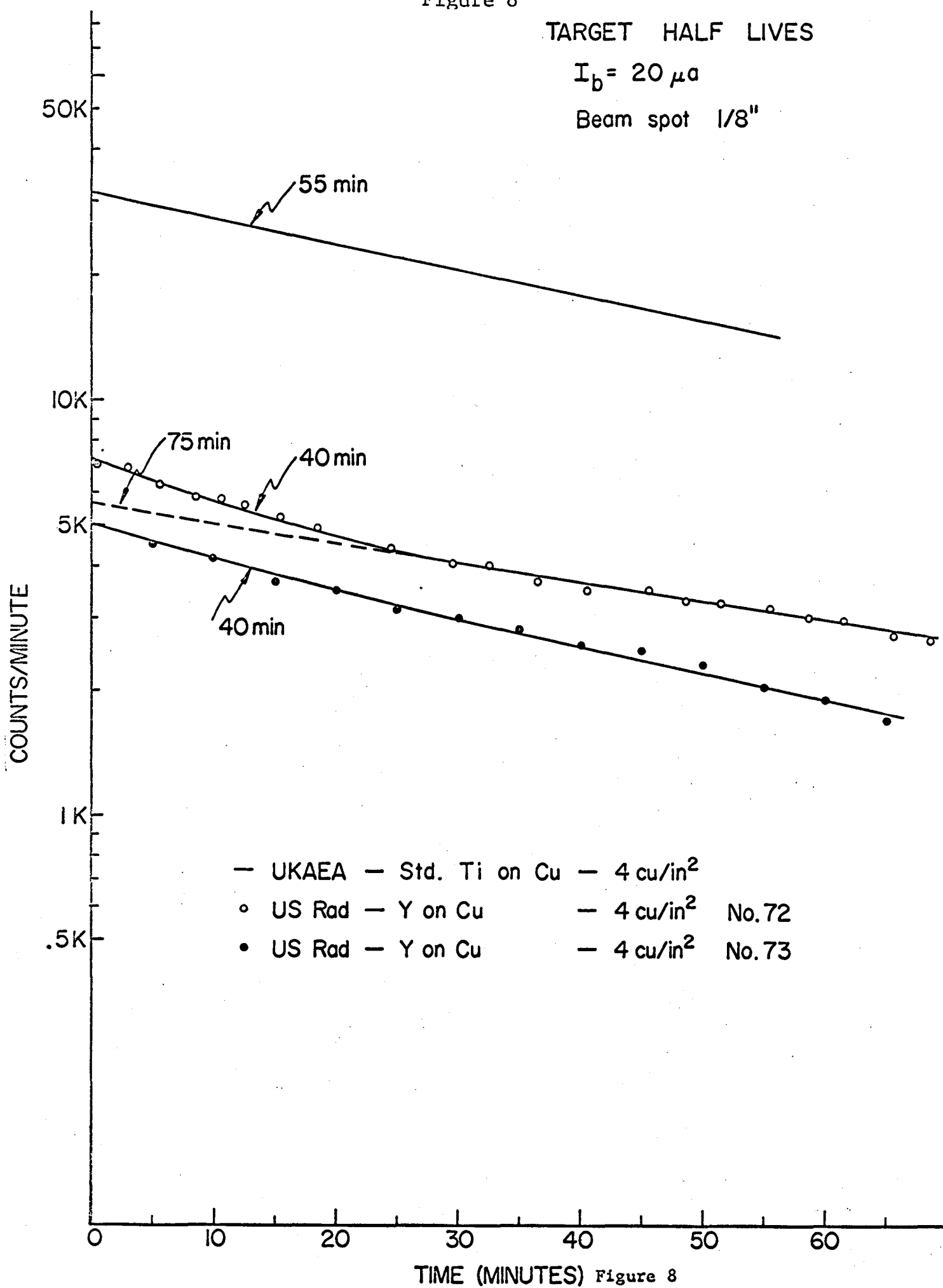
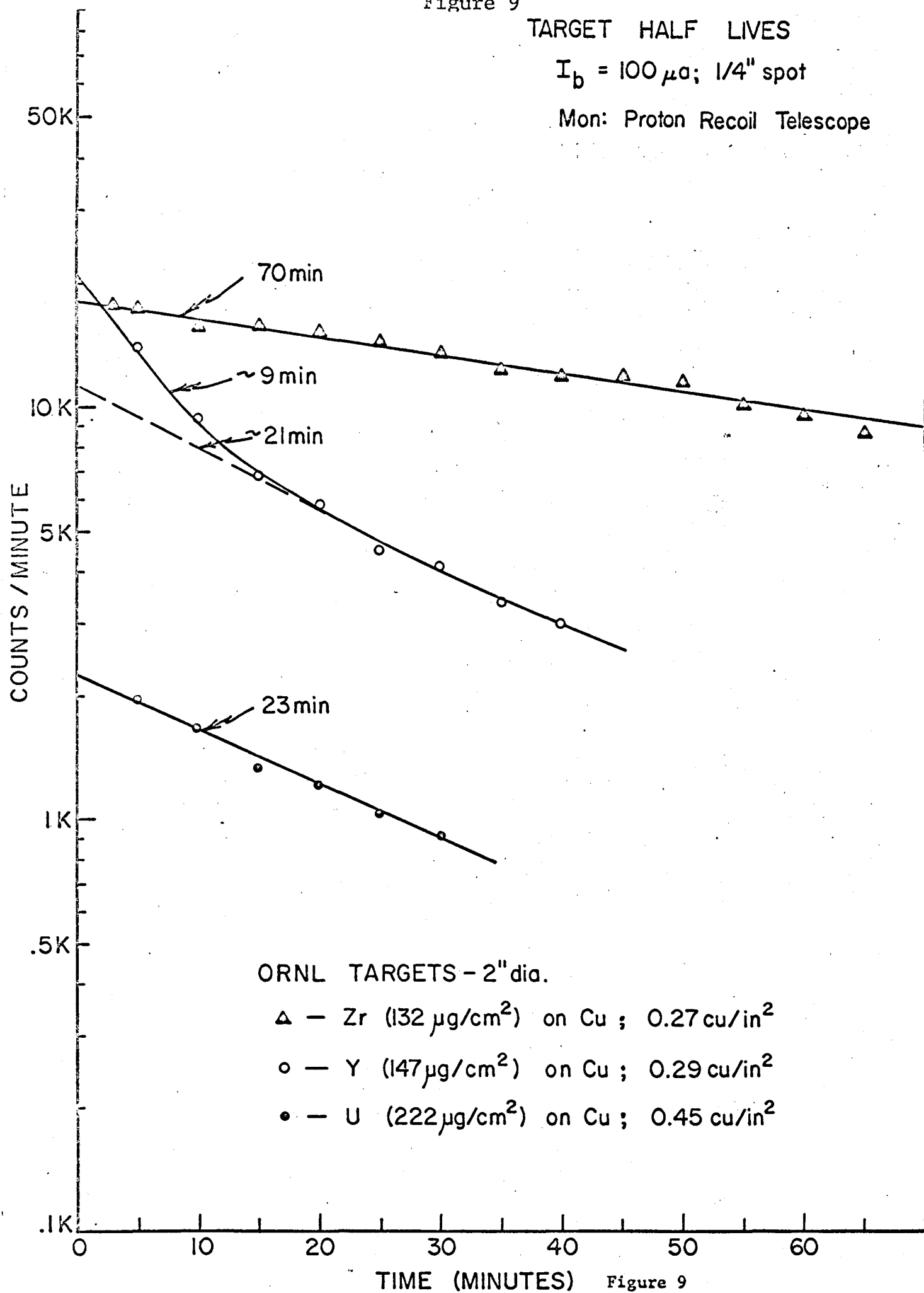


Figure 9

TARGET HALF LIVES

 $I_b = 100 \mu a$; 1/4" spot

Mon: Proton Recoil Telescope



of a mCi per cm². In examining the accelerating system and trying to find out where most of the tritium seems to deposit, there appears to be a very large amount in the region of the target assembly. It was discovered that this is hard to remove. A xénon proportional counter was used in order to look at the X-ray spectrum which might be generated from the betas absorbed in the materials. The X-ray spectrum from a tritiated target, particularly for titanium, is shown in figure 10A, the peak is the 4.85 K X-ray from titanium, the latter part of the curve is due to Bremsstrahlung. A zirconium tritide spectrum is not this good because of the higher Bremsstrahlung spectrum. In analyzing the material which was deposited on the inside of the drift tube we discovered that it was titanium tritide. The titanium had been stripped off the target, the tritium went with it. In addition, due to its plating on the stainless steel tubing, one sees also the 7.95 K alpha from iron, but to a much lesser degree. In order to extend the half lives of targets and to make them more useful, we have employed various techniques. In order to decrease the current density in the beam on the target we provide sweeping or rotation of the target. Slide 11 will show a comparison of the half life of the target, where the beam is being swept with a series of small deflection plates. The beam is normally well focussed, and then swept from side to side and up and down at sixty cycles per second. It is then dispersed over the target area. Initially started the beam was 400 μ A about one half inch in diameter. The beam was dispersed until it was about one inch in diameter. A factor of 3 in half life was obtained by dispersing the beam over the area of the target which corresponds very closely to the increased area.

In figure 12 is a picture of the assembly: the beam passes through the center of the four deflecting plates. A power supply is connected to each set of electrodes and has a variable voltage

TARGET HALF LIVES

 $I_b = 100 \mu a$; 1/4" spot

Mon: Plastic Scin (60% bias)

Ion Pump Cathodes

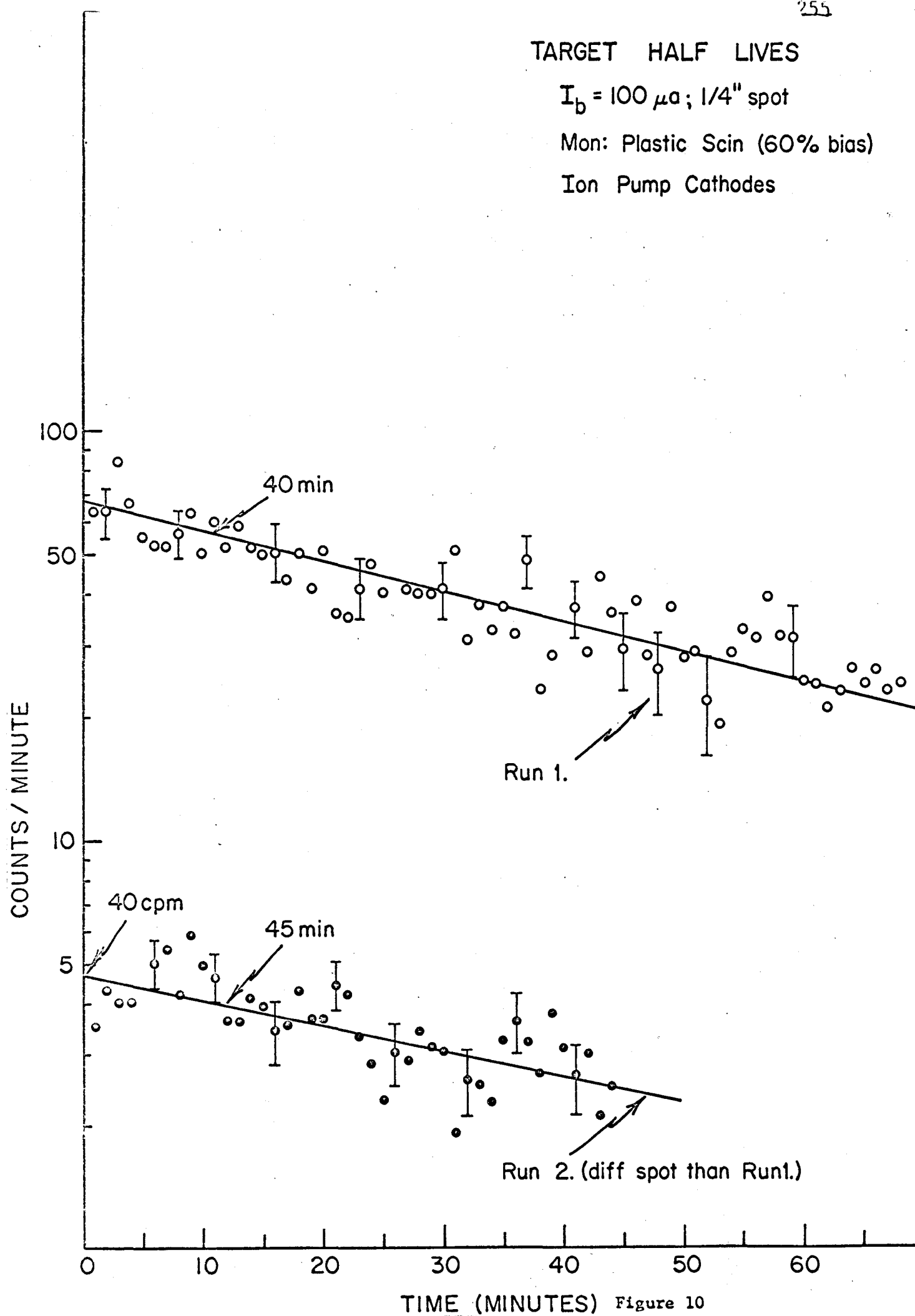


Figure 11

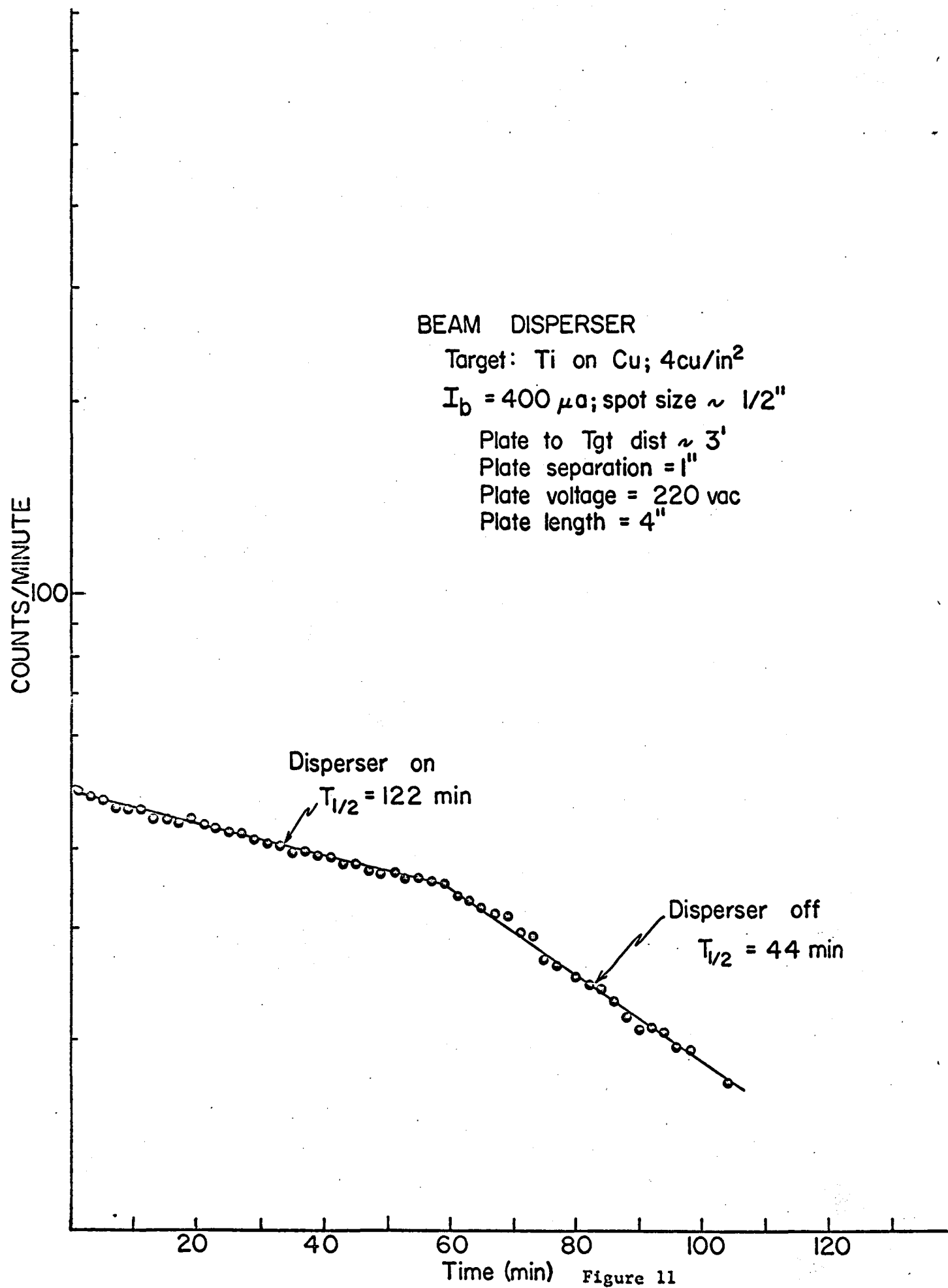


Figure 11

adjustment in order to control the amplitude of the beam spot. The assembly in Fig.13 shows a rotating target assembly. It is a circular strip, 6 inches long and 1 inch wide, placed on a cylinder. It rotates as the beam comes in perpendicular to the cylinder of rotation. In Figure 14 is plotted the half life for 2 different settings with rotation, and then stationary. The stationary half lives then essentially take over.

Figure 13 which shows the rotating assembly, provided an adaptor flange for a connection to the accelerator and then is latterly or horizontally line up to the beam. Shown in the figure is a outside water jacket, an inside cylinder, which is 1 1/2 inch in diameter and about 3 inches long. Water flows in at the top, around it and out through the bottom. There is a spacing of about 1/8 inch between samples and the beam spot. A pneumatic transfer tube may be placed in the hole which goes through the center such that the sample can be irradiated. In order to increase the effective neutron flux and keep it constant a device was developped to feeding back, from the output of the neutron detectors, a control that signal which regulates the beam current.

Fig. 15 shows an assembly designed for studying targets.

This is a multiple target holder which can accept 5 targets at a time. It will rotate such that each target may be placed into position. This instrument was used to test 4 or 5 targets such that all the targets were studied simultaneously without turning off the machine, thereby keeping the beam current, gas flow and all the properties of the accelerator constant.

Fig. 16 shows the neutron output as a function of time.

A multi-scaling system and detector was used in which we have a current feed-back that controls the beam current in order to maintain the neutron flux constant. Over a 6 hour period of time, very little change in the neutron flux was observed. However, there is a change of about a factor of 2 in the beam current.

Figure 12

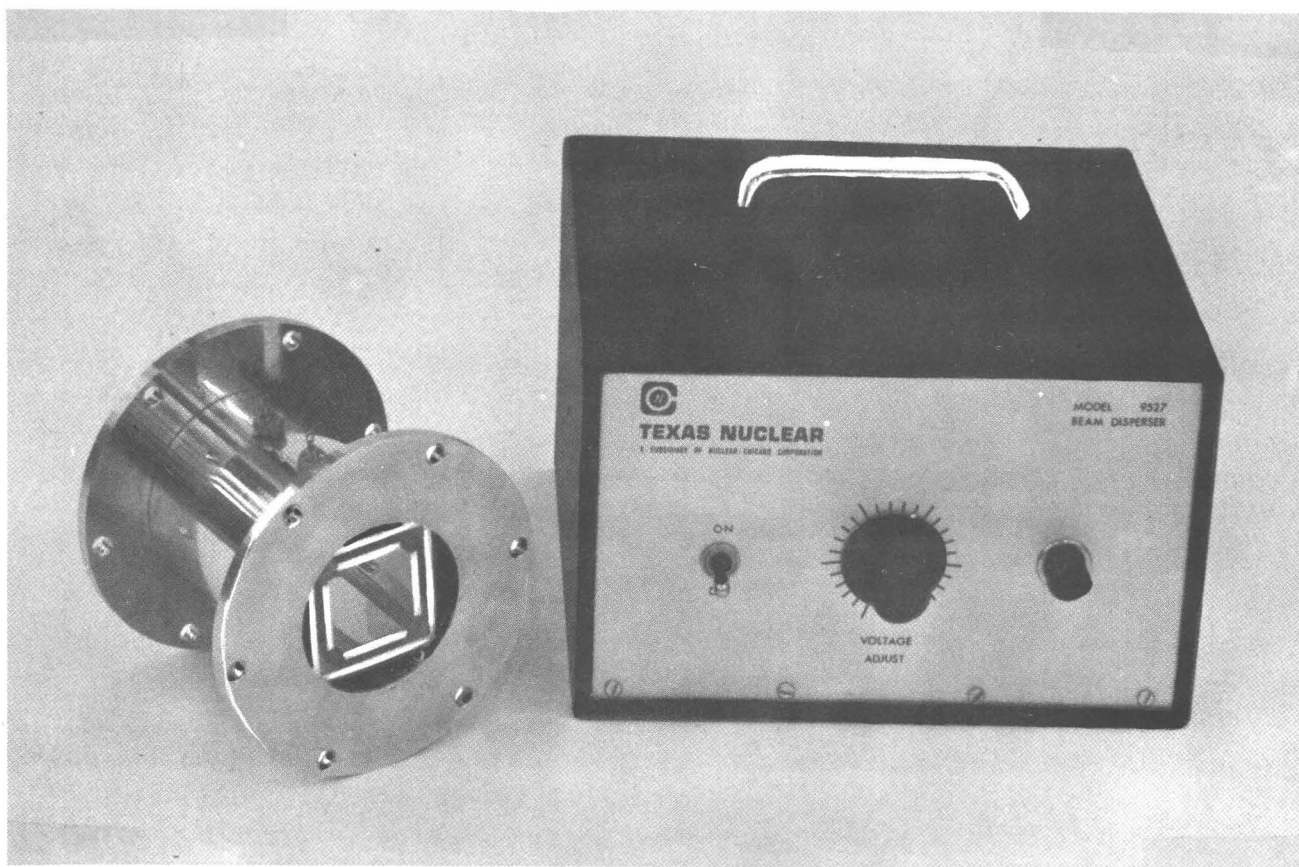
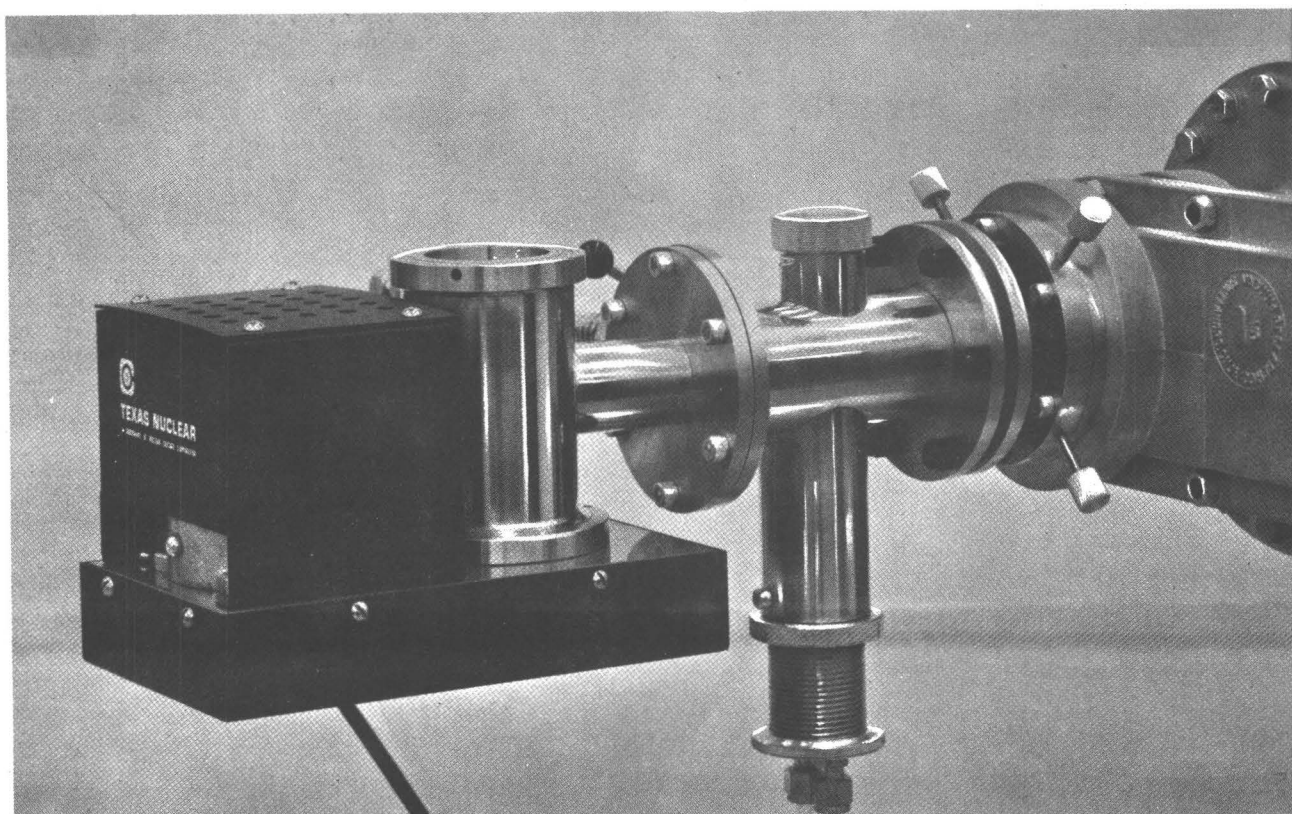
BEAM DISPERSER AND POWER SUPPLY

Figure 13

ROTATING TARGET ASSEMBLY ATTACHED TO NEUTRON GENERATOR

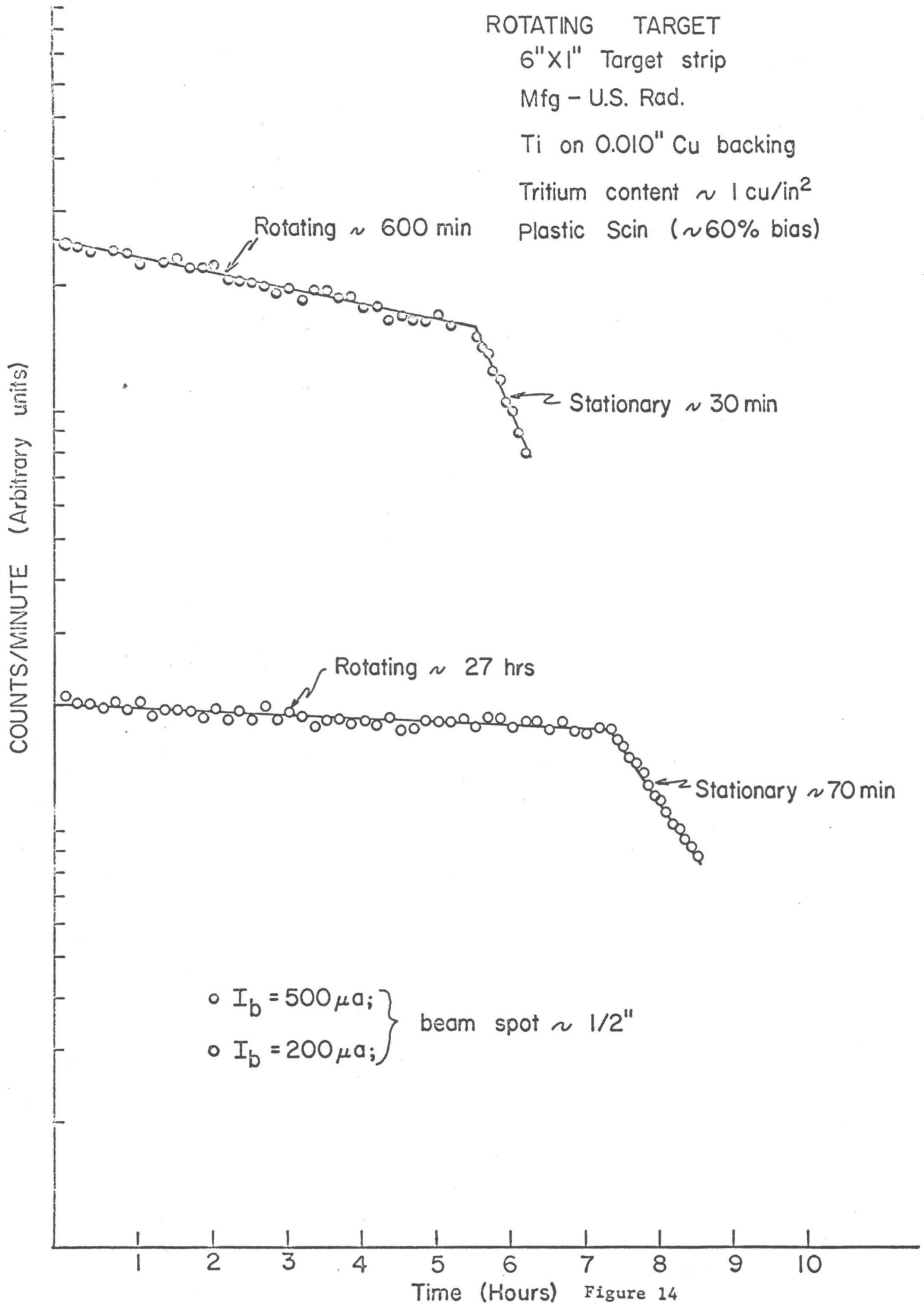


Figure 15

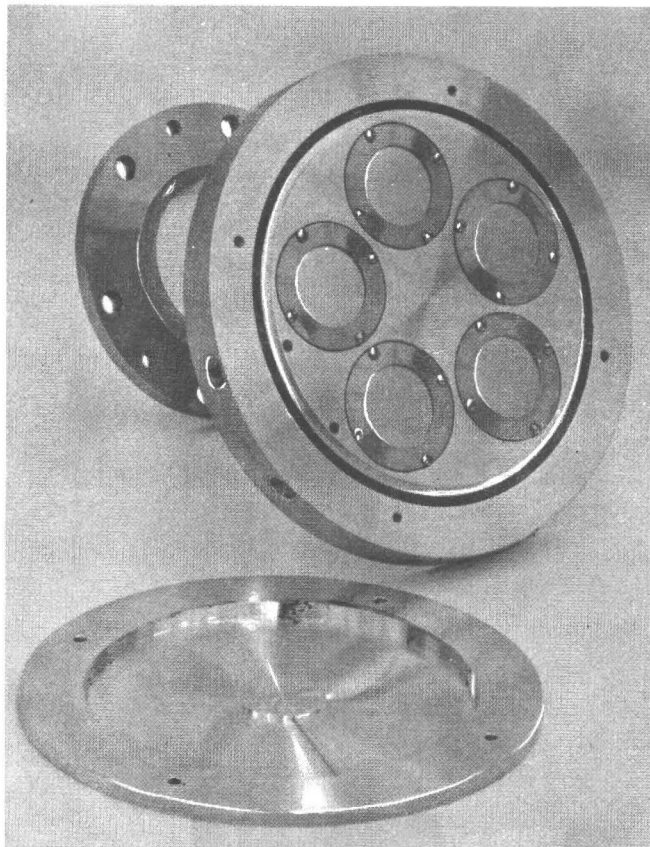
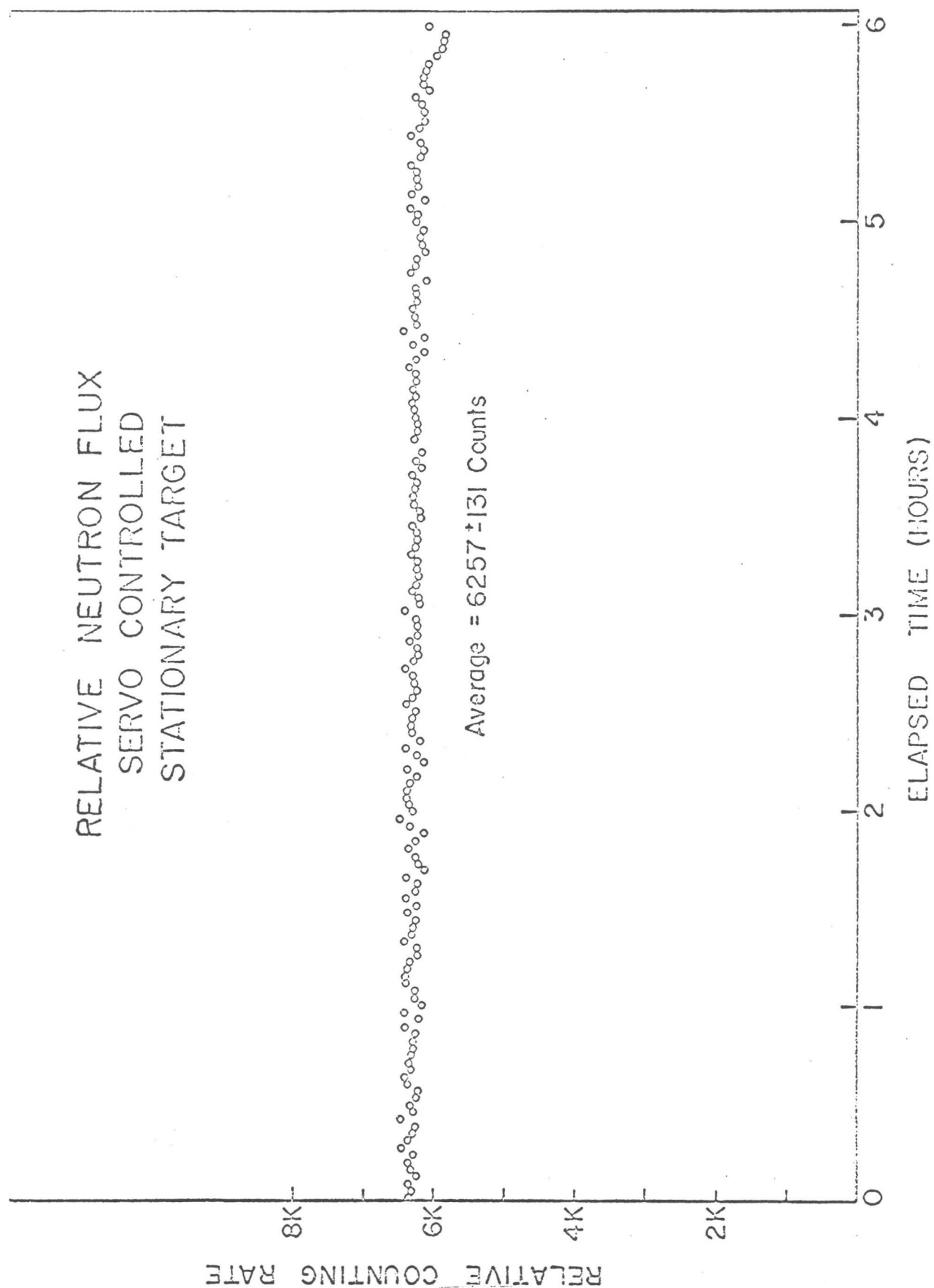
MULTIPLE TARGET SYSTEM

Figure 16



In figure 18 is shown a short-run with a rotating target assembly and beam controller. Within the statistical accuracy of the points there is essentially no change over 30 - 35 minutes. This target was subsequently tested at a later time in which was obtained about an 80 hours half life. A factor of 3 increased in the beam current was observed.

Monsieur LAVERLOCHERE - PRESIDENT

Je crois qu'il est préférable d'entendre les trois communications sur ces autres cibles tritiées, métalliques et non-métalliques, avant d'entamer la discussion. Je voudrais donc demander à Monsieur GUILLAUME de nous présenter la troisième communication, qui concerne les cibles non-métalliques, et qui a pour titre " Etat actuel des recherches effectuées à l'Université de Liège sur la production de nouvelles cibles génératrices de neutrons".

Monsieur GUILLAUME

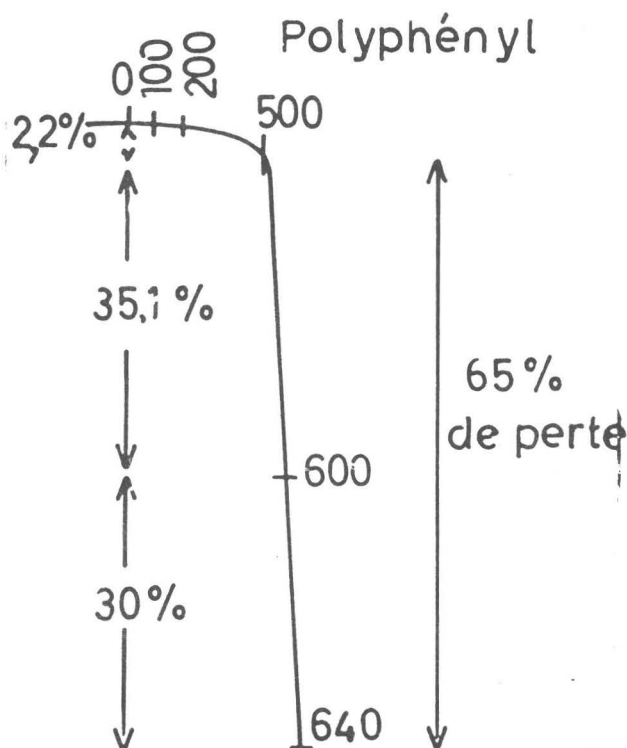
Dans les premiers mois de 1964 débutaient à l'Université de Liège et sous la direction des Professeurs G.GUEBEN, L.WINAND et J.GOVAERTS, les recherches sur la mise au point de cibles de conception nouvelle. Ces travaux, entrepris sous contrat EURATOM, (projet Radioisotopes- Recherche Euratom N° 2) sont donc actuellement en complète gestation. Les premiers résultats datent à peine de quelques mois. Les résultats partiels, obtenus jusqu'à présent nous autorisent à un optimisme raisonnable. On sait que les caractéristiques majeures idéales, que devraient présenter les cibles, sont une durée de vie la plus longue possible, un rendement neutronique très élevé (et, dès lors, une section efficace d'arrêt aussi faible que possible) , un prix de revient abordable et des propriétés de conservation satisfaisantes. Il est évident que le premier point

constitue l'inconvénient majeur des cibles industrielles, qui, comme chacun sait, présentent une durée de vie limitée, particulièrement à des rendements de neutrons de 10^{10} neutrons par seconde. On admet aujourd'hui que la principale cause de cette chute de rendement est l'instabilité du deutériure ou du tritiure métallique utilisé, à la température créée par l'impact du faisceau sur la cible. Ces considérations nous ont, a priori, conduits à supposer que si l'hydrogène appartenait à une molécule organique plutôt qu'à un hydrure métallique, sa stabilité chimique s'en trouverait non seulement améliorée, mais surtout assurée (tout au moins en deçà d'une température critique qui n'est rien d'autre que la température de fusion ou de dégradation du composé choisi, dans les conditions de fonctionnement d'un accélérateur). Les polymères organiques semblaient pouvoir répondre à ces exigences. C'est ainsi qu'un projet de fabrication de cible classique fut mis à l'étude. Nous avons donc, d'abord, recherché un polymère qui serait satisfaisant. Nous avons entrepris la recherche d'un polymère répondant, a priori, aux caractéristiques suivantes : une température de fusion ou de dégradation la plus élevée possible, la présence, dans la molécule, d'une concentration d'hydrogène au moins égale à la concentration moyenne des cibles hydrures métalliques et enfin une synthèse organique et un marquage deutéré ou tritié de la molécule choisie, aussi simple et économique que possible. Autrement dit, l'objectif était le suivant : un nombre d'étapes de synthèse minimum et un bas prix de revient des matières premières. Moyennant ces exigences, du point de vue théorique bien sûr, notre choix c'est porté a priori sur les polybenzimidazoles aromatiques, dont les points de fusion sont, le plus souvent, supérieurs à 400°C et dont plusieurs étapes fournissent des composés répondant aux exigences précitées. Toutefois, les difficultés inhérentes à un marquage tritium à haute activité spécifique - étant donné la nature complexe de la structure et de sa synthèse - nous ont incité à étudier de préférence la famille du polyphényl et de ses homologues.

Rappelons qu'en 1963, KOVATCHIK et KIRIAKISS montraient que le benzène pouvait se polymériser en présence d'un catalyseur et d'un oxydant cationique suivant la réaction suivante :



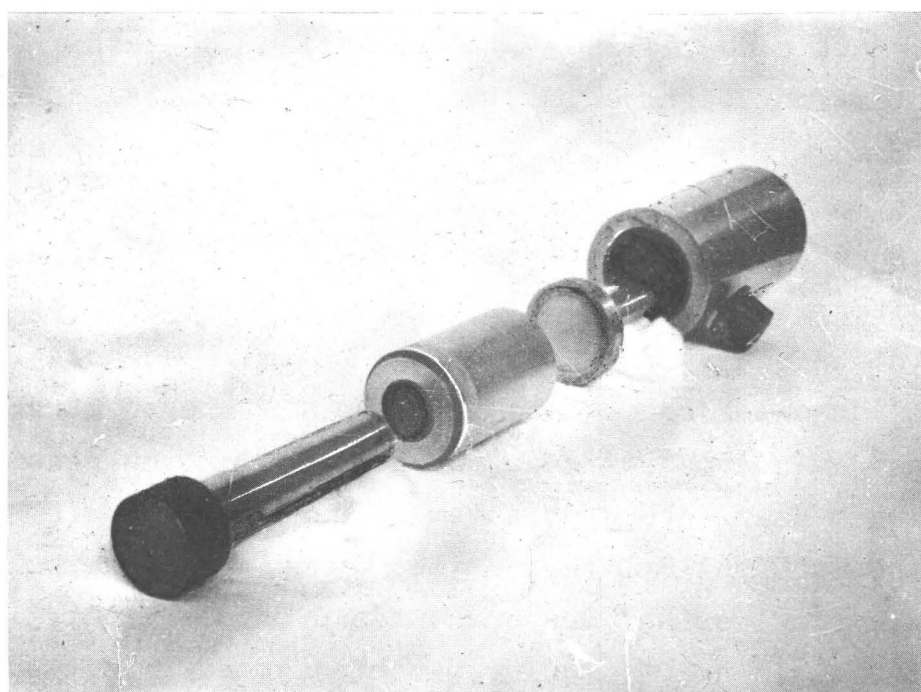
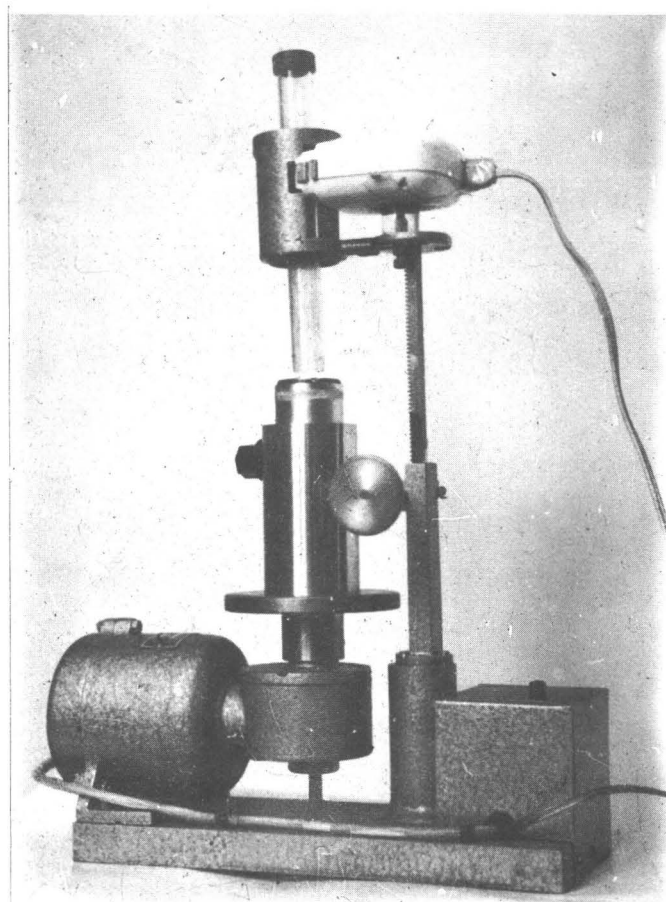
Il se forme donc un polybenzène, dont on connaît encore assez mal le degré de polymérisation. Le polymère obtenu, cristallin, que l'on appelle le "parapolyphényl" brun rouge, non hygroscopique, présente un poids moléculaire qui voisine vers 1.500 à 2.000. Il est insoluble dans tous les solvants connus et il donne, par pyrolyse, à 700-800°C, une série de dérivés, eux-mêmes polyphényls, mais de poids moléculaires plus simples, tels que le di-, le ter- ou le quater phényl. Le rendement de cette polymérisation, par oxydation cationique, ne dépassait pas 6 à 10%, ainsi que nous l'avons vérifié plusieurs fois. Nous avons éprouvé sa stabilité thermique. La thermo-balance (cfr figure 1) indique qu'il n'y a pas de dégradation avant une température de 500° : la perte en poids ne dépasse pas 2,2%. Au-delà de 500°, cette perte devient énorme et atteint 65% du poids de départ.



Ces résultats, ont été obtenus à la pression atmosphérique naturelle. Si nous voulons obtenir une cible tritiée, dont la concentration utile en tritium soit au moins égale à celle des cibles industrielles, il nous faut incorporer, dans le benzène de départ une activité spécifique qui soit au moins de l'ordre de 40 curies par milli-môle, soit de 400 curies de tritium par cm^3 de benzène. Il est évident, qu'une telle activité spécifique nous oblige à travailler sur des quantités de benzène les plus faibles possible, pour des raisons de sécurité, (sur des quantités de benzène de l'ordre du dixième de cc et même inférieure par exemple) et par conséquent, non seulement d'adapter la synthèse du parapolyphényl à l'échelle micro-chimique, ce qui n'avait pas été fait, mais encore et surtout, d'obtenir dans ces conditions micro-chimiques, un rendement maximum idéal, de 100%, de polymérisation. L'étude cinétique qui nous a pris beaucoup de temps nous a permis de mettre en évidence les principaux facteurs qui influencent le rendement de la micro-synthèse, tels que de la durée de réaction, la température, la pression, la quantité de benzène de départ, le rapport catalyseur-oxydant (rapport pondéral) la quantité de catalyseur absolue, et le mode de contact. Ce sont autant de facteurs qu'il est nécessaire d'adapter pour obtenir un maximum de rendement. L'évaluation de l'importance de chacun de ces facteurs et le contrôle rigoureux de chacun d'eux nous a permis d'obtenir un rendement idéal de 100%, à partir de quantités de benzène de l'ordre du dixième de centimètre cube et dans des conditions de travail semi-automatique, et de sécurité suffisante. Cela étant mis au point, le problème suivant consistait à réaliser avec la poudre polymère obtenue, une pastille-cible, film mince, d'épaisseur constante, adhérent sur un backing métallique, jusqu'à - si possible - des températures voisines de celle de la température de dégradation, par exemple 500°C. De multiples

essais ont été effectués dans ce but. Il s'est avéré, en fin de compte, que la technique la meilleure, fournissant une pastille adhérente irréversiblement, dans la plupart des conditions - même les plus draconiennes -, à son support inox, était la suivante : Un dispositif de tamisage uniforme, représenté par la figure 2 a été réalisé dans le but exclusif de répartir sur le backing métallique, qui se trouve à l'intérieur de cette masse d'acier inox que nous appellerons " le pastilleur". Il permet d'obtenir une répartition homogène de la poudre, que nous faisons tomber au travers d'un tamis, et au moyen d'un vibreur. La répartition se fait de façon homogène pour autant que nous fassions subir à ce pastilleur un mouvement de rotation, qui donne finalement une répartition tout à fait constante en épaisseur. C'était en fait un facteur tout à fait critique et très difficile à mettre au point. Le pastilleur en question (figure n° 3) est en fait le dispositif qui reçoit le produit tamisé. Cette figure montre la matrice à l'intérieur de laquelle se trouve un support de cible avec emboîtement - c'est dans cet épaulement que vient se ficher la cible - le backing-, une buselure entretoise, et un piston qui va permettre de réaliser la compression. Ce pastilleur, réalisé en acier inox, trempé, de dureté 100, rectifié, contient le backing d'Inox, sur lequel nous obtiendrons la cible, pour autant que nous ayons la poudre à une pression de l'ordre de 5 tonnes per cm^2 . Nous obtenons ainsi une pastille de 18 mm de diamètre et d'environ 50 μ d'épaisseur (nous pouvons descendre jusqu'à 25 μ d'épaisseur). L'adhérence du polymère -adhérence irréversible, dans les conditions de travail - n'a pu être assurée que par l'intermédiaire de couches de liaison constituées par des laques d'argent, préalablement déposées, sur le support dégraissé et dépoli. Il est utile, d'incorporer au polymère (finement pulvérisé) des quantités d'oxyde de béryllium de l'ordre de 15 à 20% qui viennent augmenter la conductibilité

Figure 2 et 3



thermique de la pastille, tout en assurant en même temps une agglomération du produit après compression. La fabrication mécanique de la cible étant mise au point, il s'avérait judicieux de comparer les pouvoirs de refroidissement de deux porte-cibles, l'un à refroidissement annulaire avant, l'autre à refroidissement central arrière, puis de tester les performances thermiques de la cible plastique, refroidie avec l'équipement le plus efficace. Les deux porte-cibles que nous avons construits pour réaliser ce test thermique, sont représentés aux deux figures 4 et 5.

La figure 4 est le porte-cible à refroidissement arrière; ce montage est construit en acier inox. A l'intérieur de sa cavité où se dépose la cible coule l'eau de refroidissement. Nous avons donc, ici, un refroidissement arrière, qui atteint 50% de la surface totale de la cible. Pour comparer un tel dispositif porte-cible à refroidissement annulaire, il était judicieux de refroidir des surfaces équivalentes.

La figure 5 montre le porte-cible à refroidissement annulaire. La cible vient s'emboîter par l'arrière sur un épaulement et le contact se fait sur une surface qui est également de 50%. Elle se fait donc sur une couronne annulaire. Nous appelons ce porte-cible " à refroidissement annulaire avant ". Nous avons mesuré systématiquement les températures de la face arrière d'une cible de polyphényl, obtenues pour 3 tensions d'accélération : 100, 200 et 300 kV, en faisant varier le courant de cible, le faisceau ayant chaque fois la même répartition sur la cible, soit un diamètre constant de 1 cm. Ces mesures ont été réalisées sur chacun de deux porte-cibles décrits ci-avant.

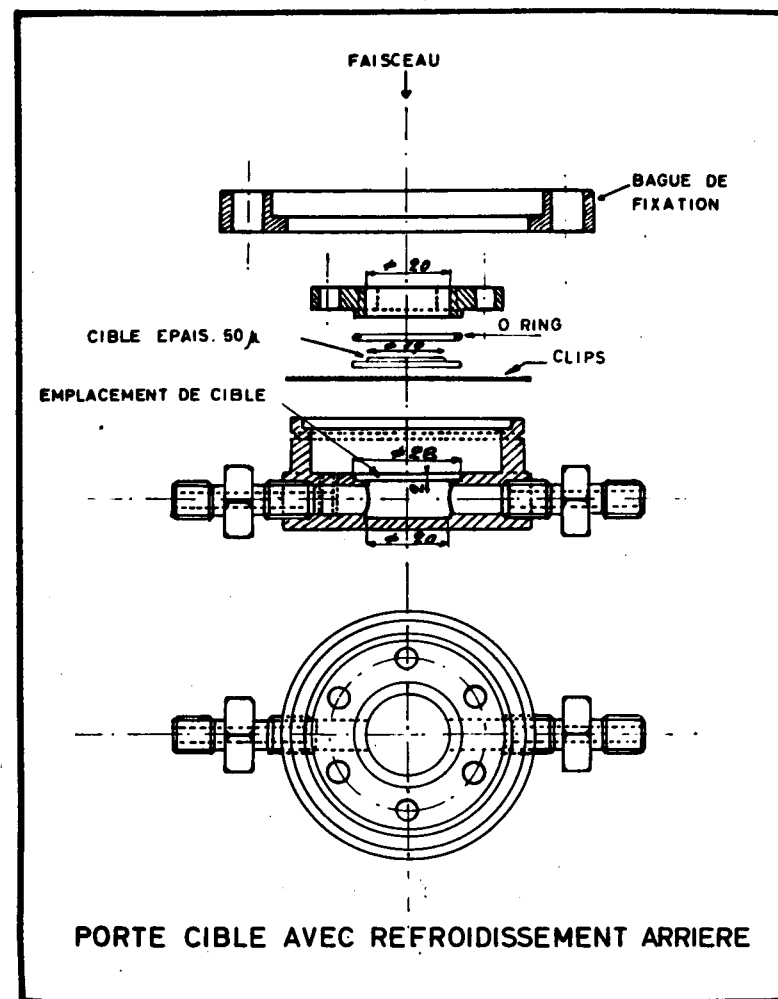
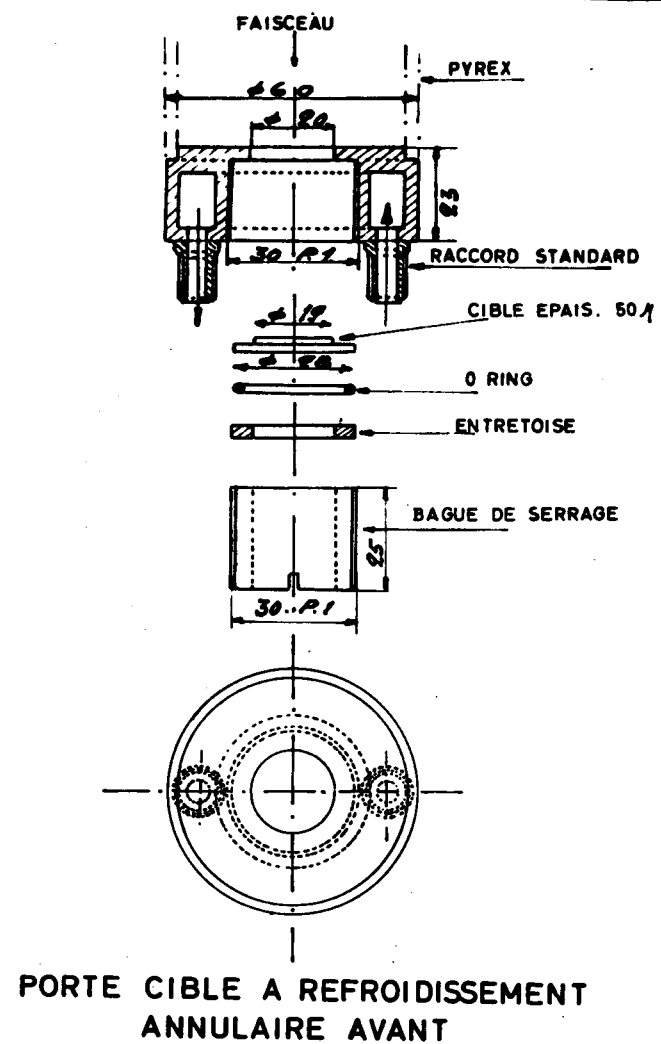


Figure 4 et 5

La figure 6 rassemble les résultats obtenus. Les courbes supérieures ont été obtenues avec le refroidissement arrière. On remarque que l'on atteint, pour des tensions de 300 KeV, des températures qui sont supérieures à 425° . Par contre, au moyen du refroidissement arrière, les courbes plafonnent et ne dépassent, dans nos conditions de fonctionnement, jamais 70°C . Nous avons donc une différence très sensible qui va nous permettre, précisément, de passer d'un extrême à l'autre, sur nos cibles plastiques. Les mesures de la face avant de la cible sont actuellement en cours.

Etant donné les résultats obtenus avec les deux refroidisseurs de cible, et connaissant la température de dégradation de notre polymère, il y avait de bonnes raisons de s'attendre à un comportement thermique satisfaisant des cibles plastiques sous faisceau de protons.

C'est, en fait, ce que nous avons d'abord vérifié. En effet, sous des conditions énergiques d'irradiation, à savoir 300 KeV-100 microampères, nous n'avons jamais constaté aucune dégradation, pendant des mesures qui s'étalaient jusqu'à 15 heures de fonctionnement. Les dernières mesures que nous avons faites, plus récentes, nous montrent que la durée importe peu pour autant que nous ne dépassions pas les conditions de fonctionnement les plus énergiques, à savoir pour notre accélérateur 400 kV et 200 μA ; pour autant, aussi, qu'il n'apparaisse pas de plage ou de point chaud au niveau de la cible, car c'est aussi là un phénomène qui apparaît en surface de matériaux plastiques. Ces phénomènes sont d'ailleurs très visibles, car ces points chauds se colorent rapidement et sont facilement détectables. Ces points chauds peuvent être dûs, soit à une répartition hétérogène de la densité de courant sur la cible, soit à la présence de défauts de la fabrication de celle-ci, tel que, surtout,

l'hétérogénéité de compression, provenant de différences d'épaisseur lors de la distribution du composé. Il apparaît donc, dès à présent, que les facteurs essentiels responsables d'un temps de vie maximum des cibles plastiques, sont d'une part la qualité du faisceau utilisé, et, d'autre part, l'état de surface de la cible, c'est-à-dire deux facteurs absolument et très facilement contrôlables. Nous avons, alors, entrepris des essais comparatifs sur cibles deutérées sur un polyphényl que nous avons marqué d'abord en deutérium. Le but de ces essais est de comparer les rendements des cibles traditionnelles et des cibles plastiques deutérées à concentration en deuterium variable. La cible de référence que nous utilisons dans ce but est une cible de titane deutérée d'Amersham épaisse de 5 mg par cm^2 de titane, et chargée de $3,8 \text{ cm}^3$ de deutérium pur (97%). La cible plastique que nous allons tester est la suivante. La synthèse du parapolyphényl deutéré ne nous a pas permis, d'obtenir, jusqu'à présent tout au moins, un polymère 100% deutéré, malgré un benzène de départ de 100% deutéré. L'échange deutérium-hydrogène, actuellement à l'étude, nous a toutefois permis d'améliorer ce rendement, tout d'abord de 25 jusqu'à 50% et enfin, jusqu'à 75% mais de façon non reproductible. La nature des tests que nous allons faire subir à ces deux cibles que nous comparons, sont les suivantes. Nous avons soumis chacune d'elles depuis 100 jusqu'à 350 kV. Et nous avons déterminé, à chacune de ces tensions, en fonction des intensités de faisceau croissantes, la valeur des rendements globaux en neutrons. La figure 7 rassemble les résultats que nous avons obtenus pour une cible de polyphényl de 25% en deutérium. Nous avons porté en abscisse les courants de faisceau et, en ordonnées les rendements en neutrons par seconde en $4 \text{ } \mu\text{A}$. Nous avons une différence de rendement qui est importante entre, d'une part, nos cibles PPD (polyphényl deutérium) hachurées

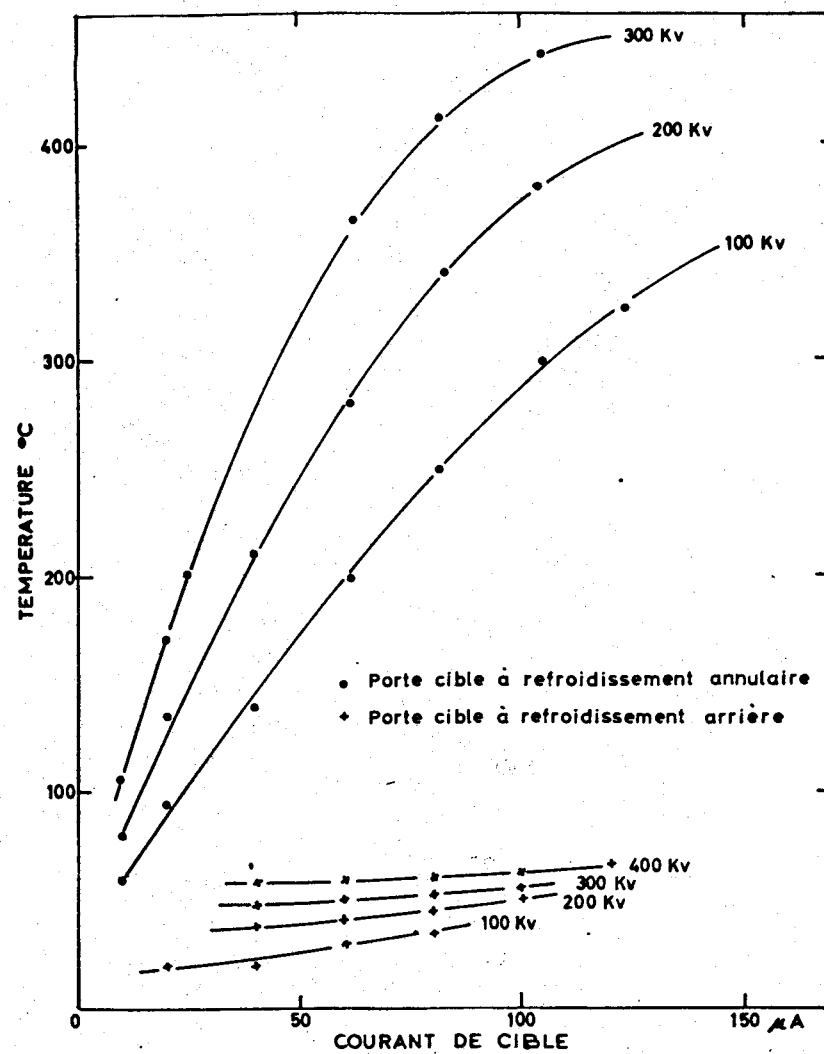
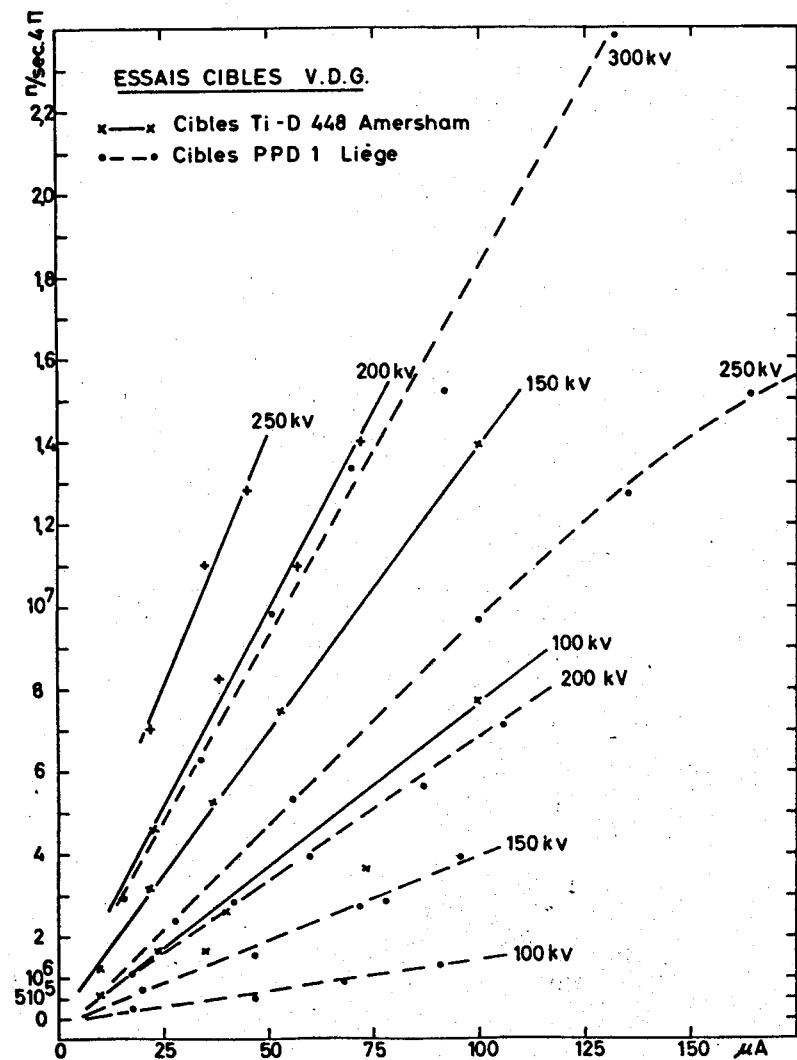


Figure 6 et 7

et les cibles classiques, titane(cibles épaisses). Nous voyons que les rendements sont voisins, pour autant que nous augmentions, sur la cible plastique, la tension d'une valeur de 100 keV par rapport à la cible classique de référence. Nous avons, ici, pour 300 keV et 200 keV, des rendements qui sont très voisins et nous avons sur la figure 8 établi la variation de ce rendement, exprimé en microcoulombs et en 4π , en fonction des tensions d'accélération. Nous voyons que le coefficient défavorable est, pour 100 keV, de 5,30. Nous avons donc un rendement de 5,3 fois moins, toujours pour la cible de l'ordre de 25°/°. Ce rendement diminue progressivement au fur et à mesure que notre tension d'accélération augmente. Malheureusement, jusqu'à présent, les résultats ne nous ont pas permis d'obtenir des points situés pour des tensions supérieures à 300 kV. Là, c'est un domaine qui reste à explorer et qui nous permet un certain optimisme. La cible que nous utilisons est une cible de 25°/° de deutérium. Signalons qu'une telle cible contiendrait $11,4 \text{ cm}^3$ d'hydrogène si elle se trouvait deutérée à 100°/°. Répartie de façon homogène dans 25mg de poudre, composée de 20°/° d'oxyde de béryllium. Il serait donc judicieux, de pouvoir continuer la courbe relative à la cible plastique. La montée non proportionnelle du débit de neutrons, pour une cible plastique, peut s'interpréter par le fait que la quantité de deutérium sollicitée par la réaction DD, croît en même temps que la tension d'accélération. L'épaisseur de la couche-cible atteint, en effet les valeurs de l'ordre de 50μ , et elle est vraisemblablement de loin supérieure au parcours des deutons de toutes énergies accessibles avec notre accélérateur, tout au moins. Il est évident que l'épuisement des cibles plastiques ne pouvait être testé sous irradiation de deutons, étant donné la formation d'autocibles DD. Nous ne pourrions estimer le temps de vie de nos cibles qu'après synthèse d'un polymère tritié. Cette synthèse est, actuellement à l'étude.

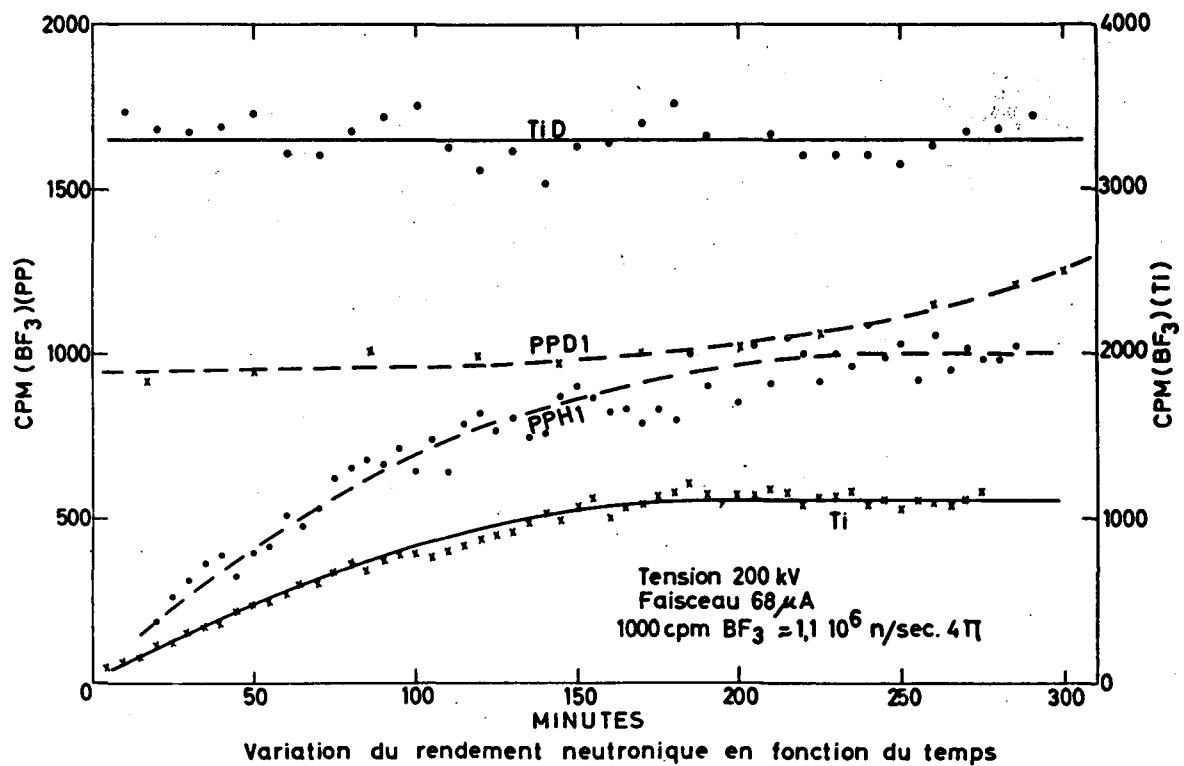
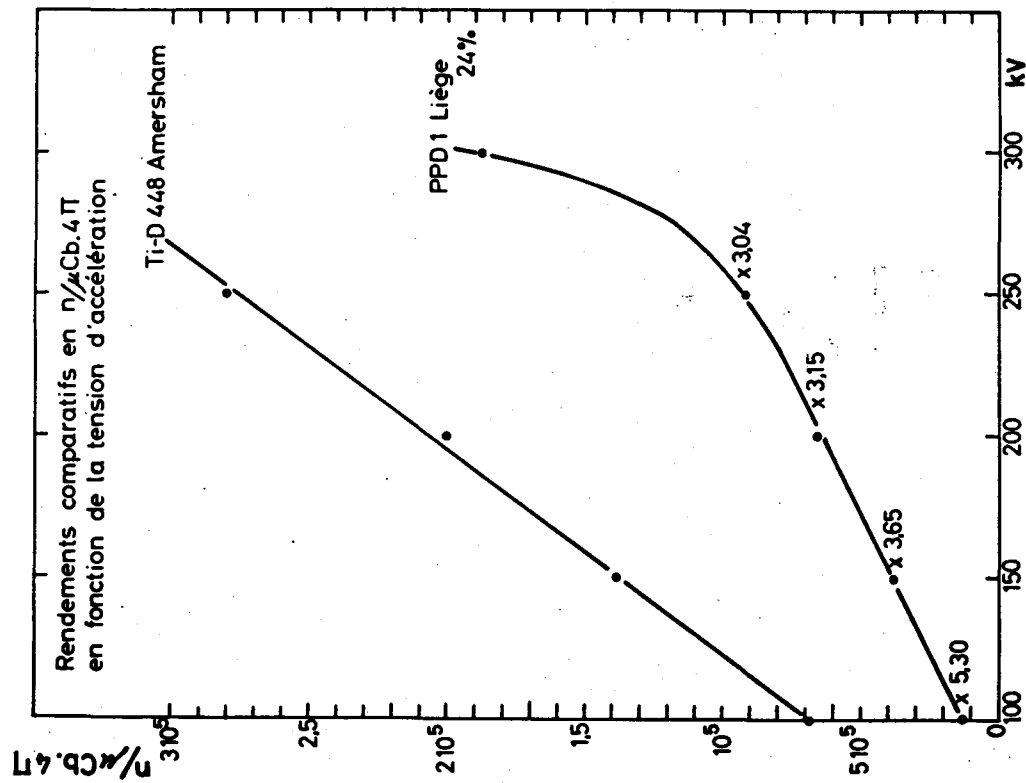
Nous avons cru bon, toutefois, de comparer l'évolution dans le temps, d'une cible plastique et d'une cible titane deutérée ou non, sous l'impact du faisceau. Les résultats que nous avons obtenus sont représentés dans la figure 9. Ils nous montrent qu'à 200 keV, 68 μ A on obtient - pour le polyphényl vierge, c'est-à-dire le PPH 1 - un rendement constant après 200 minutes d'irradiation. Un rendement de l'ordre de 10^6 neutrons par seconde, dans l'angle 4 \square , valeur qui est comparable, d'ailleurs, à celle qui est obtenue dans les mêmes conditions, sur une cible de titane métallique non-deutérée. D'autre part, la comparaison, en fonction du temps, des rendements neutroniques d'une cible titane deutérée et d'un polymère deutéré, nous enseigne que la cible métallique présente un rendement constant; tandis que la cible plastique voit son rendement neutronique croître de l'ordre de 25%, en fonction du temps, après 300 minutes d'irradiation. Nous n'avons pas prolongé l'expérience jusqu'à présent. On explique la constance du rendement de la cible métallique, en arguant du fait qu'un équilibre est rapidement atteint entre deutérium incorporé par le faisceau incident et deutérium désorbé par dégradation thermique.

L'absence de cet équilibre, pour la cible plastique, plaide en faveur d'une absence de désorption - que l'on comprendrait, d'ailleurs très mal - et, donc, d'un temps de vie supérieur. L'étude des cibles plastiques tritiées, seule, peut répondre définitivement à cette question. Ces derniers résultats, encore incomplets, méritent sans doute d'être développés et approfondis. Le problème de la tritiation du polymère étudié se posera ensuite. Nous comptons, d'ailleurs, l'aborder incessamment.

Monsieur LAVERLOCHERE - PRESIDENT

Je vous remercie Monsieur GUILLAUME pour votre très intéressante communication. La discussion sur ces 3 communications aura lieu cet après-midi.

Figure 8 et 9



Mardi 22 Juin 1965

-

Séance de l'après-midiMonsieur GERBIER - PRESIDENT

Pour cette dernière séance concernant la production de neutrons, nous avons établi un programme que nous nous efforcerons de respecter; et que je vais rapidement vous indiquer. Nous allons nous accorder 30 minutes pour discuter des 3 communications qui ont été présentées ce matin. Ensuite, nous entamerons la discussion sur la fin du programme, concernant les autres cibles que les cibles tritiées, c'est-à-dire les cibles de deutérium et ensuite différents métaux correspondant à des réactions à des énergies plus élevées. En effet, plusieurs participants ont manifesté leur intérêt pour ce genre de cibles. Ces discussions nous conduiront à l'interruption que nous espérons pouvoir placer vers 16h30. Il nous restera, ensuite presque deux heures pour réouvrir les discussions sur des points qui ont été négligés ou passés sous silence, lors de ces deux journées. En effet, de nombreux participants ont manifesté le désir de revenir sur des problèmes de contamination, par exemple, ou sur des points de détail comme les supports de cibles ou de refroidissement. J'espère que nous arriverons à tenir ce programme et, maintenant, je déclare ouverte la discussion sur les communications de ce matin de Messieurs DUBUS, MORGAN et GUILLAUME.

Monsieur FLEISCHER

Concerning the last paper on non-metallic tritiated targets is there any reason to believe that the yield should increase appreciably beyond that which was shown for the non-metallic targets ?

Monsieur GUILLAUME

Il est évident que, pour répondre à cette question, j'aurais besoin de plus de résultats expérimentaux que nous n'avons actuellement. Toutefois, il semble qu'il existe deux raisons qui me permettent de dire que les rendements neutroniques doivent dépasser, en présence de cibles de plastiques, les rendements obtenus sur cibles industrielles. Ces deux facteurs sont les suivants : d'une part, l'amélioration du rendement de synthèse, qui me permettra, j'en suis convaincu, d'atteindre 100% lors de la deutération. A celà, il faut encore ajouter l'amélioration de la concentration spécifique en deutérium, par le fait que l'oxyde de beryllium, conducteur, peut être éliminé pour autant que l'on procède à une métallisation superficielle d'aluminium. D'autre part, vous avez remarqué sur le graphique qui montre l'évolution du rendement neutronique en fonction de la tension, que la courbe relative aux rendements des cibles plastiques rejoint celle concernant le rendement des cibles industrielles. Comment peut-on expliquer cette non-linéarité ? Il semble qu'au fur et à mesure qu'augmente la tension d'accélération, le volume utile de la couche plastique augmente en même temps alors que, dans les mêmes conditions, le volume utile des couches métalliques n'augmente pas ou augmente jusqu'à une limite rapidement atteinte. En effet, les cibles épaisses métalliques font des épaisseurs de l'ordre de 1 à 2 μ - ce qui représente l'ordre de grandeur de parcours des deutons de 200 à 300 keV. Ce que je ne connais pas, en ce qui concerne les cibles plastiques, c'est le parcours exact des deutons de cette énergie, dans ce matériau organique. Mais, en première approximation - et là les calculs sont très approximatifs, je le répète -, il semble que ces parcours soient 5 à 6 fois supérieurs, c'est-à-dire de l'ordre de 5 à 6 ou 7 μ . Voilà ce que je peux donner comme réponse à la question de Monsieur FLEISCHER.

Monsieur MORGAN

I don't remember what was the neutron monitor in this particular measurement .

Monsieur GUILLAUME

Le monitoring des neutrons est double : ce sont des mesures comparatives; nous avons utilisé un long compteur BF 3 dont les dimensions sont 60 cm de long sur 7 cm de diamètre; il se trouve à 2.30 m de la source, dans l'axe du faisceau; Le compteur était placé derrière un collimateur, de 1,80 m de long et de 8 cm de diamètre. A côté de cela, nous avons fait de l'activation de plaques d'argent, qui étaient situées exactement à 1,5 cm de la source de neutrons. Ces plaques d'argent ont les dimensions suivantes : diamètre 3,98 cm, épaisseur 1 mm.

Monsieur MORGAN

I think the reason for asking that question was that the upswing in the curve occurred in the region of 230 kilovolts which happens to be the threshold for the carbon (d,n) reaction. Would it be possible that you were measuring some low energy neutrons from the carbon in the plastic ?

Monsieur GUILLAUME

Si je ne me trompe, le seuil de la réaction carbone (d,n) est plus élevé et je crois savoir qu'il est très exactement de 328 keV, c'est-à-dire, dans un domaine d'énergie que nous avons très peu prospecté. De toutes façons, aucune mesure spectrométrique n'a été faite jusqu'à présent. C'est en voie de réalisation.

Monsieur WIESNER

Wenn man daran denkt, Tritium enthaltende Kunststofftargets zu verwenden, ist es sicher richtig, Polyphenylen gegenüber anderen Polymeren den Vorzug zu geben, weil sie nicht nur relativ hohe Temperaturen ohne Veränderung aushalten, sondern auch besonders strahlenbeständig sind. Es ist trotzdem die Frage, ob sie bei der Verwendung als Beschleunigertargets nicht doch schon nach kurzer Betriebszeit zerstört werden, weil die Strahlenbelastung in diesem Fall aussergewöhnlich hoch ist.

Bei einer Strahlstromstärke von 100 μ A und einer Beschleunigungsspannung von 150 keV wird dem Target immerhin eine Strahlungsenergie von rd. 10^{20} eV/sec zugeführt. In dem dem Strahlenchemiker gebräuchlicheren Mass Megarad entspricht das einer Dosisleistung von 1,5 Mrad/sec. Dabei wird angenommen, dass die gesamte Strahlungsenergie von 1 g Polyphenyl aufgenommen wird. Bei allen bekannten Kunststoffen haben aber Strahlendosen zwischen 100 und 10.000 Mrad durchgreifende Veränderungen zur Folge. Diese Zahlen gelten für Bestrahlungen bei Raumtemperatur. Bei höheren Temperaturen ist nicht nur die Strahlenbeständigkeit als solche geringer, sondern auch die Temperaturbeständigkeit nimmt durch die Einwirkung der Strahlung ab. Man kann daher daran zweifeln, ob die Kunststofftargets nach einer gewissen Bestrahlungszeit überhaupt noch aus Polyphenyl bestehen oder ob es sich nicht einfach nur um eine Art Kohlenstoffgitter handelt. In einem solchen Gitter kann das Deuterium eingefangen und festgehalten werden. Dabei wird dieser Rückhalteeffekt durch die Zugabe von Berylliumoxid wahrscheinlich noch erheblich verstärkt. Durch den dauernden Beschuss mit Deuteronen kann der durch Diffusion trotzdem langsam eintretende Verlust des Targets an Deuterium ausgeglichen werden. In diesem Fall wäre das Polyphenyl ein recht

gutes Deuterium-Selbsttarget. Es ist allerdings auch möglich, dass das Polyphenyl als solches erhalten bleibt, weil das durch die Wirkung der Bestrahlung verlorengehende Deuterium durch das eingeschlossene Deuterium ersetzt wird.

Bei der Verwendung von Tritium anstelle von Deuterium im Polyphenyl und Beschuss des Targets mit Deuteronen fehlt jedoch ein solcher Ausgleich des durch die Gasentwicklung eintretenden Tritiumverlustes. Darüber hinaus tritt eine zusätzliche Strahlenschädigung des tritiierten Polyphenyls durch die Zerfallsenergie des Tritiums auf, die keineswegs zu vernachlässigen ist. Arbeitet man mit der von Monsieur GUILLAUME angegebenen Tritium-Aktivität von 40 Ci/Target, so beträgt die innere Strahlenbelastung des Polyphenyl etwa $5 \cdot 10^{17}$ eV/min. Dabei wurde mit einer mittleren Energie der beim Zerfall des Tritium ausgesandten β -Teilchen von 5,5 keV gerechnet, die jedoch praktisch vollständig im Targetmaterial selbst absorbiert wird. Damit ergibt sich eine innere Strahlenbelastung des tritiierten Polyphenyls von grössenordnungsmässig 10 Mrad/Tag, die jedoch vom Zeitpunkt der Herstellung an unabhängig davon vorhanden ist, ob und wann das Target zur Neutronenerzeugung benutzt wird. Seine Beständigkeit über längere Lagerzeiten dürfte daher nicht gewährleistet sein, ganz abgesehen davon, dass auch mit dieser inneren Strahlenbelastung eine Gasentwicklung verbunden ist, die aus Strahlenschutzgründen bei der Lagerung besondere Vorkehrungen notwendig macht.

Diese Ueberlegungen zeigen, dass eigentlich die Versuche mit deuterierten Polyphenyltargets noch nicht sehr viel über das zu erwartende Verhalten von tritiierten Polyphenyltargets aussagen können. Wirklichen Aufschluss kann man erst mit tritiierten Targets erhalten, wobei es zur Aufklärung der Strahlenwirkung auf das Targetmaterial vielleicht zweckmässig ist, zunächst Targets zu verwenden, in denen Tritium nur in einer für Traceruntersuchungen ausreichenden Menge enthalten ist.

Monsieur GUILLAUME

Je vous avoue que je n'ai pas de calcul concernant les taux de destruction en fonction de l'énergie dissipée à l'intérieur des polymères en question. Il est évident que le manque de résultats sur polyphényl tritiés ne me permet pas de répondre avec assurance à la question de Monsieur WIESNER. Toutefois, ce que je peux dire : c'est que ce ne sont pas des autocibles sur carbone qui se forment quand nous irradiions du polyphényl au moyen de deutérium. En effet, une dégradation n'a jamais pu être mise en évidence sous faisceau de deutons sur polyphényl deutéré. Sur quelle base puis-je répondre à cette question aussi affirmativement ? Uniquement à la suite des mesures de spectrométrie infrarouge que nous avons réalisées sur le matériau après irradiation. Il est évident que, si nous avons une destruction avec formation de carbone résiduel, il ne serait plus question de s'attendre à des cycles benzéniques. Or, les cycles benzéniques sont toujours là, après irradiation, dans les conditions que je vous ai stipulées tout à l'heure, à savoir : 15 heures, 300 keV, 100 microampères. Il est évident, qu'en ce qui concerne le marquage tritium, un doute, du moins une certaine appréhension, nous empêche d'être très optimistes, puisque les temps de vie des molécules à haute activité spécifique empêchent une longue conservation de ces molécules marquées. Mais les quelques contacts que j'ai pu avoir avec des fabricants de molécules marquées au tritium, d'activité spécifique de l'ordre de grandeur de celle que je vous ai signalée, c'est-à-dire 40 à 60 curies par millimôle, nous permettent de nous attendre à des temps de vie qui soient de l'ordre du mois. Il semble que, si des temps de vie sont expérimentalement respectés, ce soit un progrès. C'est assurément ce que j'espère. Je ne puis vous en dire plus.

Monsieur MILLER

One further question to Monsieur GUILLAUME. I remembered the curve that showed that the output of the (d,d) reaction increased with time, as the deuterons impinged on the polyphenyl-D target, that is, as the polyphenyl-D targets continued to be used they became more efficient. Did you notice that the superloaded polyphenyl-D target was less temperature-stable than the fresh polyphenyl-D target ? Such a knowledge might give us an insight as to the nature of the inclusion of the extra deuterium in the polyphenyl-D, that is if the extra deuterium in old targets was chemically bound or absorbed ?

Monsieur GUILLAUME

Si j'ai bien compris la question, on me demande de comparer la stabilité du PPH et du PPD ? Je dois dire que nous n'avons jamais constaté de différence de comportement entre les deux cibles. De toutes façons, lors de la préparation, les cibles doivent être cuites pour éviter la désorption sous l'impact du faisceau - désorption due, vraisemblablement, aux laques-supports qui contiennent l'argent des couches d'adhérence. Ces laques (dont je ne connais pas la constitution : je n'en suis pas le fabriquant), renferment un substrat qui désorbe, et est éliminé vers 250 - 300°. Voilà pourquoi une cuisson des cibles, qu'elles soient hydrogénées, deutérées et même tritiées, s'avérera toujours indispensable pour obtenir un comportement thermique absolument idéal sous faisceau.

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

Merci, Monsieur GUILLAUME. Pour des raisons géographiques, nous allons passer la parole à Monsieur GOVAERTS, d'abord, et à Monsieur STEELE, ensuite.

Monsieur GOVAERTS

En liaison avec quelques questions qui ont été posées, et en tenant compte des résultats que nous avons obtenus jusqu'à présent, je voudrais d'abord insister sur le fait que nous n'avons pas encore fait de la spectrométrie des neutrons, car, je le répète, les résultats dont il a été question ce matin sont tout-à-fait récents. D'autre part, nous avons aussi envisagé pas mal de paramètres dont notamment celui de la conservation du polymère tritié. Je voudrais signaler également que le but de notre communication était simplement de rapporter nos résultats expérimentaux. Ces résultats semblent pouvoir nous permettre d'envisager l'avenir avec optimisme, mais il ne faut pas nous faire dire des choses que nous n'avons pas voulu dire. Il est possible qu'un peu plus tard nous aurons d'autres renseignements mais pour le moment, nous ne pouvons pas en dire plus.

Monsieur STEELE

I have had some experience with this type of polymer in the area of gamma radiation. We, of course, were interested in this polymer for an entirely different reason, but we noticed that the characteristic absorption peak for the spectrophotometer (at 280 millimicrons) was there and after some irradiation we began to notice a shift to the higher wavelength which we associated with the decomposition of the polymer. There was in fact an induction period time which lasted some two or three hours and then the polymer began to dissociate pretty rapidly as shown by the appearance of an absorption band at a much higher wavelength. However, it would seem that the energies that we are talking about here as compared with the kilocuries that we used to irradiate this particular polymer, I would guess that the polymer probably would hold the tritium

without too much difficulty. We irradiated this particular polymer for long periods of time with 25.000curies of cobalt 60 before we noticed an appreciable degradation. That may show some light on it.

Monsieur FLEISCHER

I was wondering if you could venture to guess what the best energy for the deuteron beam is going to be for a tritiated target and two, whether you could explain the increase in yield with increasing deuteron energy with the increasing cross section ?

Monsieur GUILLAUME

En effet, la section efficace de la reaction DD croissant avec l'énergie du faisceau incident, il est logique de voir augmenter le rendement neutronique quand on augmente l'énergie du faisceau. Il y a, d'autre part, lieu de supposer que le rendement maximum sera atteint lorsque le parcours des deutons dans la couche sera de l'ordre de grandeur de l'épaisseur de cette couche. Il serait donc intéressant de connaître l'énergie que devrait présenter un deuton incident pour avoir une pénétration qui soit de l'ordre de l'épaisseur des cibles utilisées.

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

Je ne sais pas s'il y a un physicien ici qui peut répondre à la question de Monsieur GUILLAUME concernant la pénétration des deutons ?

Monsieur MANIN

Je pense que c'est de l'ordre de 15 kilovolts par microgramme/cm.

Monsieur MORGAN

If the excitation function of the dd reaction which is given in Rev.Mod.Phys. Vol 28 n° 2 Pp103 is used and calculated for this particular polymer, the range-energy relation as a function of the deuteron energy, which is in general almost a linear function yet non-linear in the very low energies. I would estimate without making the calculation, that this is probably of the order of 150 keV per milligramme. In the region of 2 MeV one can use the curve for the range-energy and can determine the range of the particle. Knowing the range of the particle the number of deuterons or deuterium nuclei that the beam intercepts, then certainly you will only have a thick target yield which is the integral under the cross section curve.

Monsieur CHRISTALLER

Ich glaube die Kurve zeigt den Energieverlust pro Wegeinheit in Abhängigkeit von der eingestrahlten Deuteronenenergie. Sie läuft genau umgekehrt, d.h. bei niedrigen Deuteronenenergien ist die Energieabgabe pro Wegeinheit gross und fällt dann u.zw. bis zu einer Energie, die schon in der Gegend der Lichtgeschwindigkeit liegt, d.h. also bei etwa 25% der Lichtgeschwindigkeit und steigt dann langsam wieder infolge Polarisationsseffekte.

Monsieur MUNZER

For the sake of completeness I should like to add that for very low deuteron energies the curve drops again, in the order of some 10 keV, which is the reason why it is interesting for neutron generators.

Monsieur MORGAN

I agree with the previous comments; a good dissertation on this may be found in the Reviews of Modern Physics by H.A. BETHE 1937.

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

Je vous remercie. Je pense également que ce n'est pas le lieu pour ouvrir une discussion sur ces parcours de deutons. Le problème a été, je pense, posé en termes suffisamment clairs et nous pourrions y réfléchir ou en parler pendant l'inter-
ruption.

Je désire remercier tous les orateurs - et ils sont nombreux - qui ont posé des questions à Monsieur GUILLAUME, et remercier particulièrement Monsieur GUILLAUME, que nous avons mis beaucoup à contribution. Il est certain que l'intérêt de sa communication de ce matin se trouve confirmé par les nombreuses réactions qu'elle a suscitées cet après-midi. Si nous devons discuter à nouveau sur ce point, je préférerais que nous le fassions tout-à-fait à la fin de la journée et je désire aborder, maintenant les autres cibles.

Nous commencerons par les cibles de deutérium. Je souhaite que nous y consacrons assez peu de temps car, à nouveau, l'intérêt s'est manifesté pour les cibles destinées aux plus hautes énergies, auxquelles il conviendra de laisser un temps suffisant. La discussion est ouverte sur le point III, en conséquence : cibles de deutérium, types-préparations-conditions d'emploi-autocibles, et rendements.

Qui désire parler à ce sujet ?

.....(personne ne se présente).

Personnellement, je trouve un intérêt aux auto-cibles, mais je

n'ai pas une compétence suffisante pour vous faire un exposé à ce sujet et si nous n'avons pas d'orateur, nous passerons au point IV: cibles de béryllium.

Le programme comprend cibles de béryllium,

- 1) pour réactions au moyen de particules chargées (réactions deutons-béryllium)
- 2) pour réactions γ - n
- 3) convertisseurs d'électrons en rayonnement de freinage pour réactions γ - n.

Qui desire prendre la parole à ce sujet ?

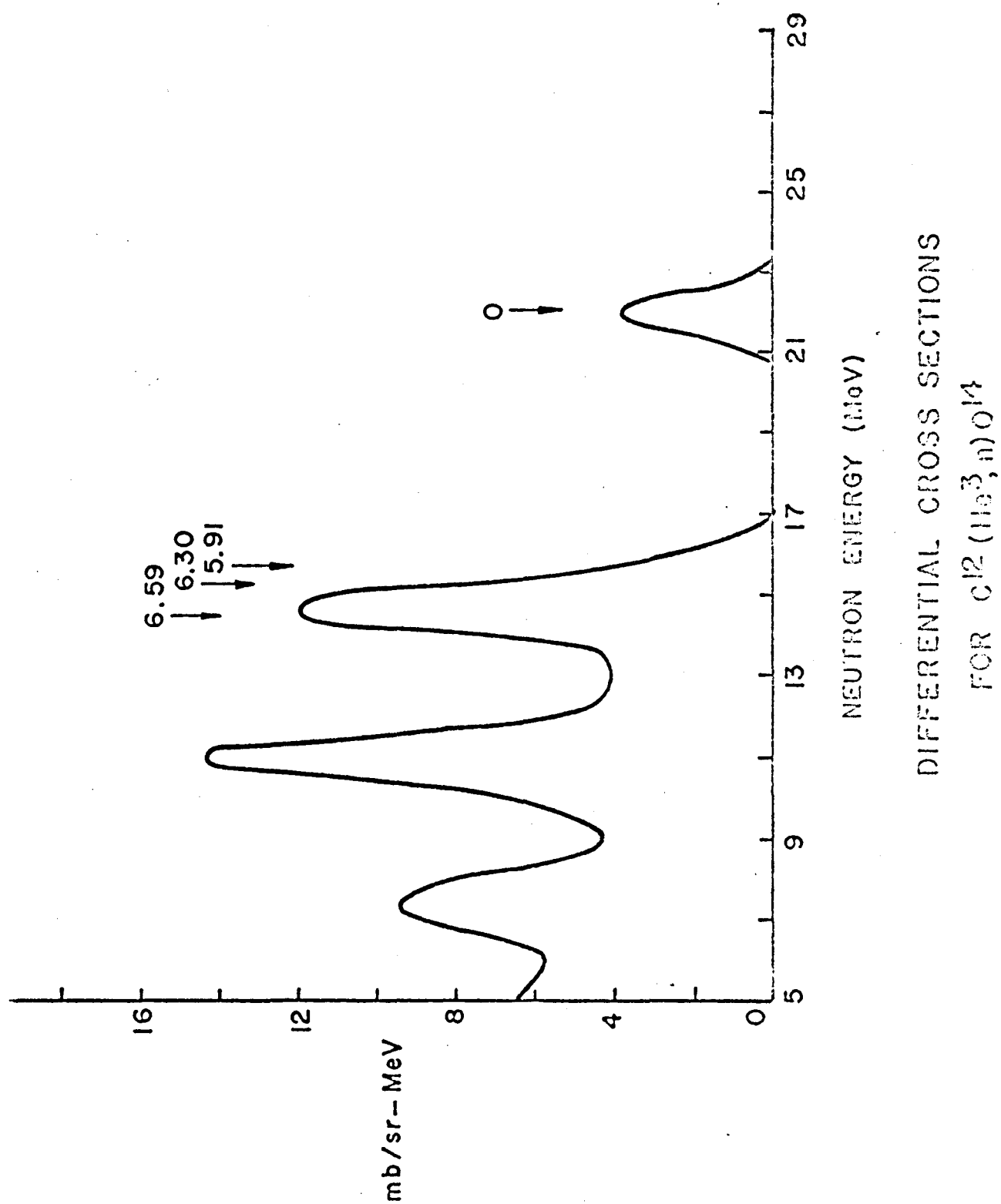
Monsieur FLEISCHER

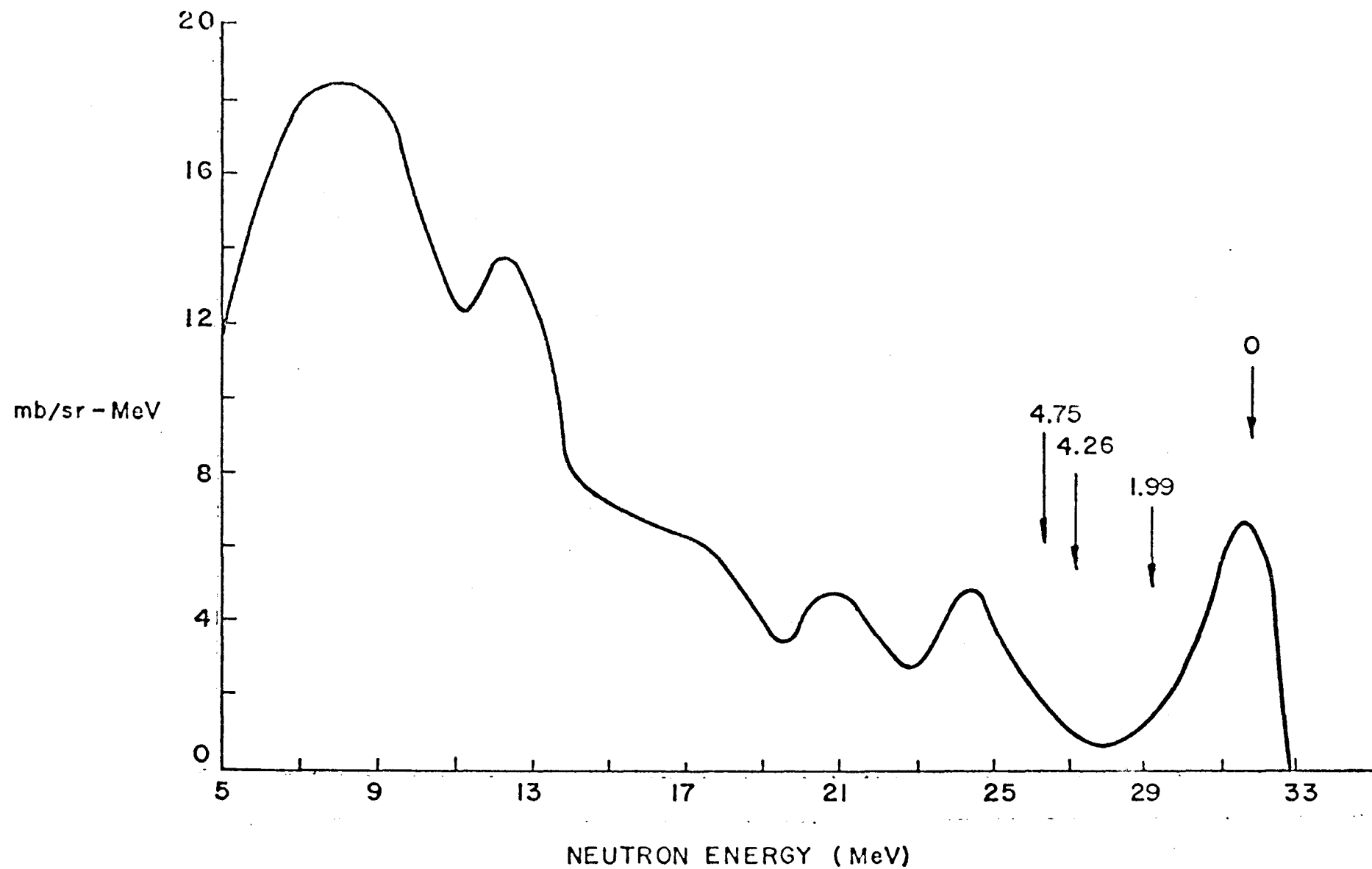
Perhaps if the colloquium is interested, I have some spectrum of a Be 9 (He^3, n) C 11 reaction that I can present at this time. This is the neutron energy versus cross section for Helium 3 on a Beryllium target and it's from data taken at Los Alamos I can give people a reference if they are interested. It's for 25 MeV Helium 3 incident on a Beryllium target. I will present a slide of this tomorrow morning and discuss it in more detail but I thought it might be of interest to people who want to be here tomorrow morning. The left hand scale here is in millibarns per steradian. This is for a thin target, I also have a carbon 12 with helium 3 if anybody's interested in seeing it. These are just useful for high energy neutrons.

Figure 2 : Bryant, H.D. et al, Nuclear Physics 53, 97 (1964)

Figure 3 : Manley, J.H. Physical Review 130, 1475 (1963) and private communication.

Figure 2





DIFFERENTIAL CROSS SECTIONS
FOR $\text{Be}^9(\text{He}^3, n)\text{C}^{11}$

Figure 3

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

Merci Monsieur FLEISCHER. Monsieur FLEISCHER était inquiet quant à l'intérêt des courbes spectrales qu'il nous a proposées. Nous pensons que Monsieur STEELE pourrait effectivement présenter ses résultats et ses données.

Monsieur STEELE

I have some practical data, based on the same reaction, concerning the neutron production that I could put on the board. I used that particular reaction, and others, to produce neutrons for activation analysis and I have compared it with what one would expect from a DT source. As most of you are aware, the basic interest in Helium 3 irradiation for neutron production is to eliminate the main problem we have faced in fast neutron work, that is, the decrease in neutron production with time, using the Tritium target. It has long been the aim of the practicing activation analyst to have a continuous source of energetic neutrons capable of at least inducing the $(n,2n)$ type reactions. This automatically means the (n,p) reaction on oxygen 16. I did some preliminary work with the cyclotron, using 12 MeV helium-3 ions and a series of neutron producing targets. Our interest was "is there any thing here" and remembering that we used helium-3 at 12 MeV, where as the excitation function you saw on the board was at twenty, you will have to extrapolate in your mind. I used the beam current on 1/10 of a microamp. for these experiments. For the most part I used a small cell to hold the target but that is immaterial to the discussion. The reaction of commercial interest is the oxygen 16 (n,p) nitrogen 16 with a threshold energy in the same area as the $(n,2n)$ reactions.

Elemental lithium, beryllium, and boron were irradiated with a 0.1-amp beam of 6- and 12-MeV He^3 ions, and the resulting neutron yields from these sources were examined as sources for fast-neutron activation analysis. No attempt was made to measure the neutron spectra; however, the $\text{O}^{16}(\text{n},\text{p})\text{N}^{16}$ reaction (reaction threshold of 10.2 MeV) was examined--because of the current great interest in oxygen. Another high threshold reaction examined was $\text{Cu}^{63}(\text{n},2\text{n})\text{Cu}^{62}$ (~11 MeV.) Since it was beyond the scope of this study to establish absolute neutron yields, neutron production for the O^{16} and Cu^{63} reactions was compared to 14-MeV neutron fluxes necessary to produce equivalent activities with a 150-kV Cockcroft-Walton accelerator, using the D-T reaction.

Samples for irradiation were rotated in the neutron field for varying periods of time, depending on the half-lives involved, and pneumatically transferred to a 3-in. by 3-in. NaI(Tl) detector. Sensitivities quoted are those extrapolated to the case of a pair of 5-in. by 5-in. NaI(Tl) crystals, which compose the system routinely employed for these determinations at General Atomic. Irradiation timing in these experiments was rather crude for the short-lived isotopes, but enough runs were made to average out this source of error. After the cyclotron had been run for 10 to 20 min. of 5 sec. was used for all irradiations. Results of the neutron production experiments are listed in the table below. Copper foil placed around the cyclotron target end indicated that the neutron beam was highly concentrated in the forward direction as expected.

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

Thank you Mr. STEELE, I have a question about the size and thickness of your targets.

Table 10

RELATIVE NEUTRON YIELDS WITH He^3 IRRADIATED LITHIUM,
BERYLLIUM, AND BORON THICK TARGETS

Sample	Reaction	E_{He^3} (Mev)	Target	Beam Current (μa)	t_{irr} (sec)	t_{count} (sec)	Sensitivity (c/mg)	Equivalent D-T Flux (n/cm ² -sec)
Oxalic acid	$\text{O}^{16}(\text{n}, \text{p})\text{N}^{16}$	12	Li	0.1	20	20	20	1×10^7
Oxalic acid	$\text{O}^{16}(\text{n}, \text{p})\text{N}^{16}$	6	Li	0.1	20	20	2	1×10^6
SiC	$\text{Si}^{28}(\text{n}, \text{p})\text{Al}^{28}$	12	Li	0.1	30	60	52	7.5×10^6
SiC	$\text{Si}^{28}(\text{n}, \text{p})\text{Al}^{28}$	6	Li	0.1	30	60	15	2.2×10^6
Oxalic acid	$\text{O}^{16}(\text{n}, \text{p})\text{N}^{16}$	12	Be	0.1	20	20	27	1.4×10^7
Oxalic acid	$\text{O}^{16}(\text{n}, \text{p})\text{N}^{16}$	6	Be	0.1	20	20	<0.01	$< 10^5$
SiC	$\text{Si}^{28}(\text{n}, \text{p})\text{Al}^{28}$	12	Be	0.1	30	60	75	1.1×10^7
SiC	$\text{Si}^{28}(\text{n}, \text{p})\text{Al}^{28}$	6	Be	0.1	30	60	11	1.5×10^6
Oxalic acid	$\text{O}^{16}(\text{n}, \text{p})\text{N}^{16}$	12	B	0.1	20	20	15	7.5×10^6
Oxalic acid	$\text{O}^{16}(\text{n}, \text{p})\text{N}^{16}$	6	B	0.1	20	20	<0.01	$< 10^5$
SiC	$\text{Si}^{28}(\text{n}, \text{p})\text{Al}^{28}$	12	B	0.1	30	60	44	6×10^6
SiC	$\text{Si}^{28}(\text{n}, \text{p})\text{Al}^{28}$	6	B	0.1	30	60	7.5	1.1×10^6

Monsieur STEELE.

Our targets were 0.5 inch in diameter and 0.06 inch thick. For thermally unstable materials, we used a stainless steel cell with a 0.0005 inch thick titanium window. The back side of the cell was water-cooled.

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

Je remercie Monsieur STEELE; sa communication me semble susciter des nombreuses questions. Je demande instamment aux orateurs de se limiter au sujet, c'est-à-dire aux cibles productrices de neutrons, et de s'efforcer de ne pas dévier sur les applications.

Monsieur REIFENSCHWEILER

Ich möchte gerne darauf hinweisen, dass eine Maschine, die mit 12 MeV arbeitet, natürlich wesentlich teurer ist, als die kleinen mit der T(d,n)Reaktion arbeitenden Maschinen. Diese Tatsache steht natürlich einer allgemeinen Anwendung solcher Geräte, die wir ja gerade anstreben, sehr entgegen. Um Ihnen ein Beispiel zu geben, die Ausbeute, die Sie nannten, von 10^7 Neutronen pro Sekunde x qcm kann zum Beispiel mit unseren kleinen abgeschmolzenen Neutronenröhren über mehrere tausend Stunden konstant erzeugt werden. Die Röhre, die Herr LOMER beschrieben hat, und unsere eigene neue Röhre, können eine hundertmal höhere Ausbeute erzeugen, und wir hoffen, dass wir in Zukunft den fehlenden Faktor 10, den Sie mit 100 μ A und 12 MeV Beschleunigungsspannung erreichen, auch noch gewinnen können. Ich glaube, dass Herr LOMER mit meinen Ausführungen übereinstimmt.

Monsieur WIESNER

Eine andere Möglichkeit, auf einen sehr aufwendigen, grossen 12 MeV Beschleuniger zu verzichten, höhere Empfindlichkeiten als die von Monsieur STEELE angegebenen zu erreichen und gleichzeitig die Nachteile der Verwendung von Tritiumtargets zu überwinden, ergibt sich u.E. aus der Verwendung von Lithiumtargets. Unter Anwendung der (d,n)-Reaktion erhält man in diesem Fall Neutronen von etwa 15 MeV. Eine ausreichende Quellstärke ergäbe sich schon bei Verwendung eines Generators mit einer Beschleunigungsspannung von 2 MeV und einer Strahlstromstärke von 100 μ A.

Ganz allgemein halten wir es im Interesse der industriellen Anwendung der Aktivierungsanalyse für zweckmässig, nach Wegen für den Ersatz der Tritiumtargets durch andere Targets zu suchen. Nach den Ausführungen von Herrn REIFENSCHWEILER ist es zwar kein Problem, die Neutronenausbeute bei Verwendung von Tritiumtargets über mehrere 1.000 Stunden konstant zu halten, wenn nur etwa 10^7 Neutronen/sec erzeugt werden. Wird jedoch die Ausbeute auf 10^9 oder gar 10^{10} Neutronen/sec erhöht, dürfte die Konstanz der Ausbeute wohl kaum über Zeiträume von mehr als 1.000 Stunden gewährleistet werden können; denn diese ist weniger eine Frage der Bauart des Beschleunigers als vielmehr der Targeteigenschaften.

Monsieur STEELE

Let me answer the first question first, I have almost no interest in 10^7 neutrons. I don't care how long it lasts because our analytical problems are not at that region. I used 10^7 because that was the convenient beam current of the machine that I rented. I am simply extrapolating to the point that I hope to operate. Now, why I did not like the deuterons. If you work with high energy deuterons, the amount of radio activity that you get from the stripped neutrons is almost as bad as working with a nuclear reactor for activation analysis.

The low energy neutrons cause an increase in characteristic (n, γ) - products and this becomes the dominating factor. This is, of course, the one point we are trying to eliminate with accelerators. This is particularly true if you are dealing in biological samples. I don't discount these various applications for deuteron irradiations as there are some excellent ones. But one point further, our interest in Helium-3 was not specially for surface irradiation. We wanted to know what else a machine of this type could do for us. Therefore, we looked at its neutron output as a means of helping to offset the initial investment. In terms of cost, it is estimated on the basis of the tritium targets that are currently used per year, that we probably could finance the additional 15.000 to 80.000 dollars a machine in a period of five years.

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

Je pense que, de ce point de vue, la discussion sur les machines accélérant les hélions 3 pourra reprendre demain, à l'occasion de l'analyse par activation par particules chargées. Je remercie Monsieur STEELE pour son exposé détaillé et précis. Nous avons décidé de discuter des cibles de béryllium. Nous sommes partis, maintenant sur les cibles de lithium d'abord. A ce sujet, je dois dire que le papier de Monsieur BILPUCH, de la Duke University, ne sera pas présenté en séance, mais figurera dans les Procéedings, Monsieur BILPUCH étant absent.

HIGH RESOLUTION NEUTRON SPECTROSCOPY

BY E.G. BILPUCH and H.W. NEWSON

Duke University

Durham, N.C. U.S.A.

Since the installation of the Van de Graaff at Duke University in 1951 a major part of our program has been to look for systematic variations in nuclear structure. We have made extensive measurements in total neutron cross sections throughout the periodic table and have looked at charged particle reactions (on elements where our machine energy was adequate) with the idea of trying to improve our resolution under the existing experimental conditions. If one is to study nuclear structure of the compound nucleus by looking at individual levels and identifying their spins and parities and their widths and spacings then one ought to use the best possible resolution that can be obtained. To this end we have developed a "homogenizer" which improves the beam resolution and a windowless gas target chamber which makes it possible to have a target on the order of 100 eV or less in thickness which can be used for total cross section measurements, and for (p,n) as well as other charged particle reactions. These developments are the subject of this paper.

The overall resolution of an experiment can be measured by observing the width at half-maximum of some resonance which has a negligible natural width. By overall resolution we mean the effect on the resonance width due to the following:

- (1) The energy spread of the incident beam
- (2) The effect of target thickness
- (3) The effect of target Doppler
- (4) In the case of neutrons the energy spread of the detected neutron flux.

The observed resonance can be one of several reactions applicable to the experiment and to the energy range. Some of these reactions are; (p,n) , (p,γ) , (p,p) , (p,p',γ) , (n,n) , and $(n\gamma)$. The total width at half-maximum will be approximately the square root of the sum of the squares of the effects contributing to the energy smear.

One can easily find the combined energy spread of the beam and target Doppler by taking a thick target yield curve on an element which has an isolated resonance with a narrow width. Here I'm referring to the (p,γ) resonances in A^{27} at 992 keV and C^{13} at 1.746 MeV. However, one cannot use a thick target to study individual resonances of closely spaced levels. Therefore our efforts have been in the direction of improving our resolution by reducing the energy spread of the beam down to that due the Doppler effect, producing a target approaching zero thickness, and maintaining the yield by increasing the beam on target.

It has been known for some time that the energy distribution for protons from an R.F. ion source has a half-width of about 70 eV^1 which means that if you accelerate this beam to 2.1 MeV that you should have a beam resolution of 1 part in 30,000. This kind of beam resolution has not been observed previously; it could easily be masked by the target Doppler effect, target thickness effect, and the natural width of the resonance. Several years ago we determined that there was a time-dependent energy fluctuation on the beam and that this energy fluctuation was inherent in the control system. We therefore constructed a device called "the homogenizer"² which corrects for this time-dependent energy fluctuation.

Fig. 1 is a floor plan for our total cross section experiments and from which we can explain how the homogenizer works. A beam is brought into the electrostatic analyzer which has most of the voltage on the inside plate. The analyzer is

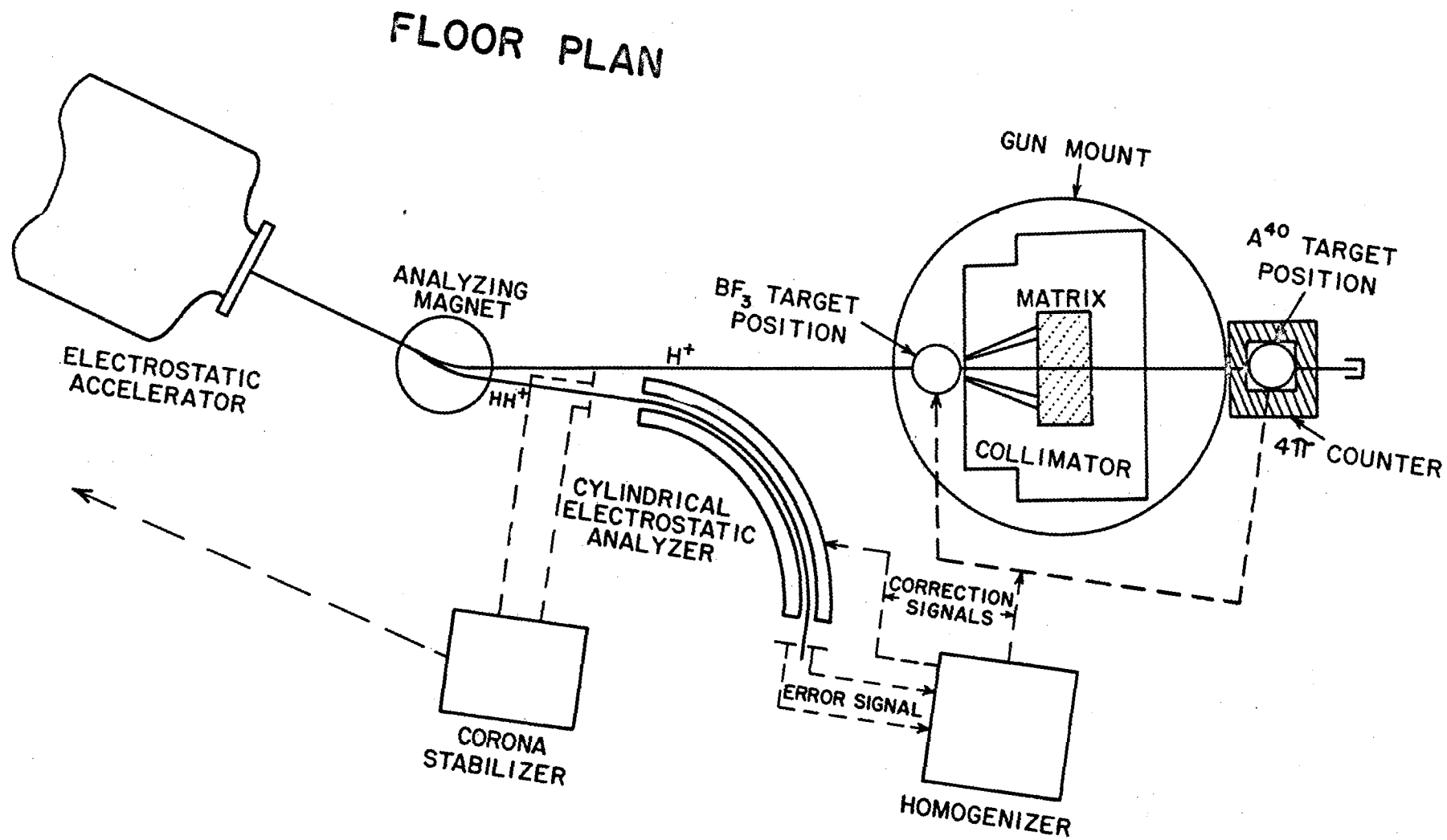


Figure I

set at a resolution of 1 part in 4000 which is determined by the openings of the object and image slits. Now a time-dependent fluctuation on the beam will cause the beam to oscillate across the image slit. The homogenizer is essentially a null device which keeps the beam centered on the image slit by changing the outside plate voltage which has an average value of 35 volts. By forcing the beam through the analyzer we are changing the energy of the beam and we correct for this by modulating the target with a correction signal derived from the image slits. Since the energy fluctuation is time dependent and since an R.F. source puts out H^+ as well as an HH^+ beam we can control on the HH^+ beam and put our correction signal on the target at the H^+ part as shown in this figure. This method has the added advantage that the H^+ beam can be brought out of the magnet and directed to the target without going through any slit system except a collimator just before the target chamber.

In Fig. 2 we show the yield for the $C^{13}(p,\gamma)$ resonance at 1.746 MeV. The top portion is the yield without the homogenizer and the machine adjusted for its highest possible resolution.^{3a} The lower portion of this figure shows the improvement in beam resolution with the homogenizer. This is quite an improvement in beam resolution when you realize that now the major energy spread is due to the Doppler effect which is about 350 eV. From these data it is easy to show that the beam energy spread is of the order of 100 eV or 1 part in 17,000.

With this beam resolution the kind of neutron total cross section data³ we see is shown in Fig. 3 which shows σ_T for Ni^{62} and Ni^{64} in the energy range $50 < E_n < 250$ keV. Using neutrons from the $Li(p,n)$ reaction we obtain an overall spread of about 1 keV. This is indicated by the narrow resonances in this figure. Better resolution should be possible but we are limited by solid lithium target which seem to have a crystalline

Figure 2

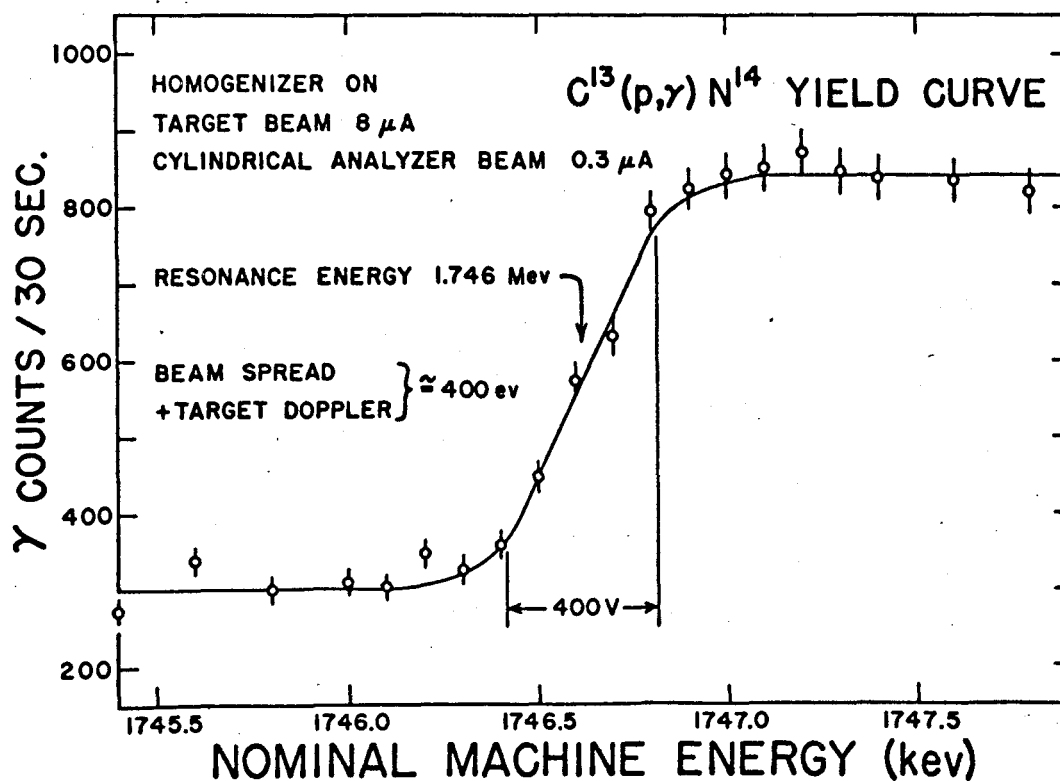
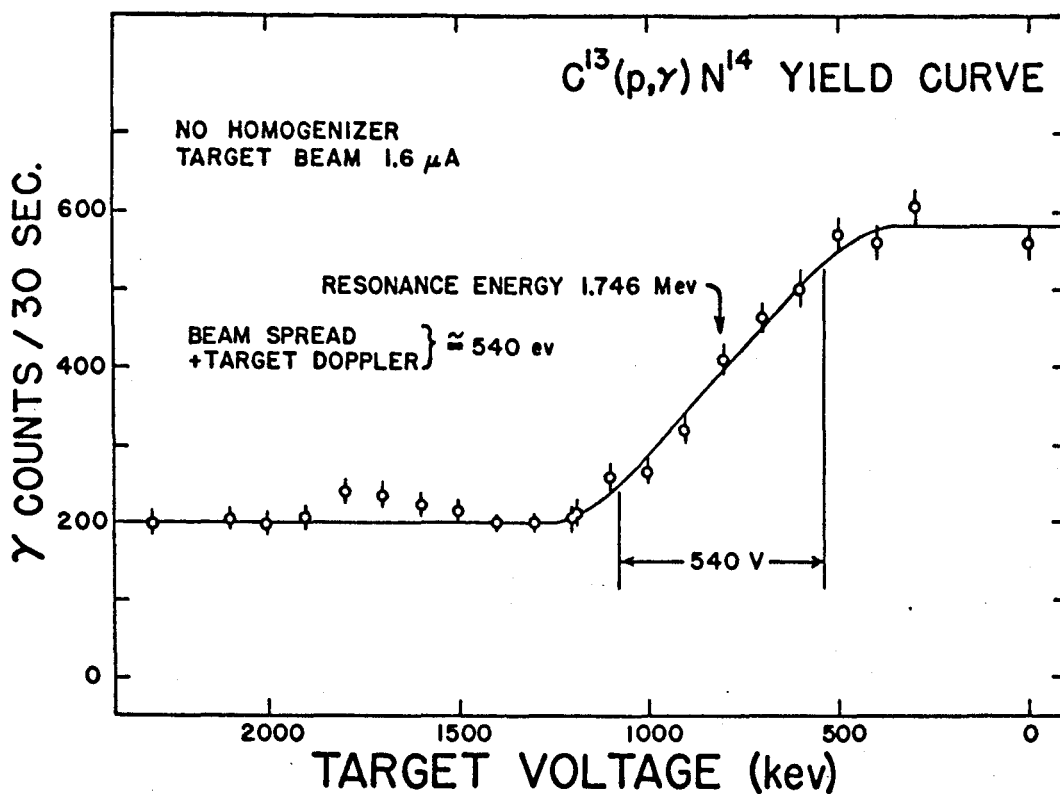
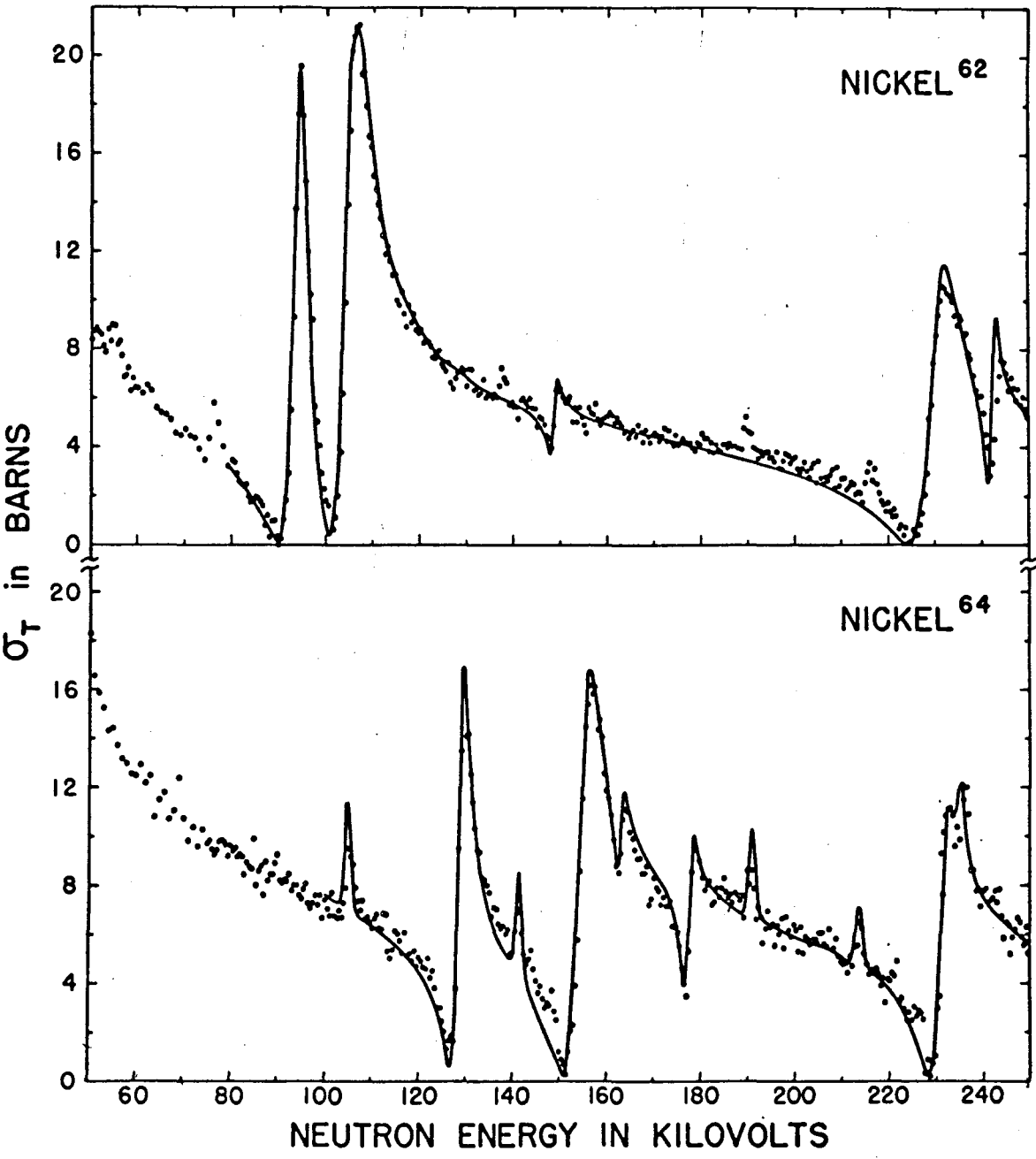


Figure 3



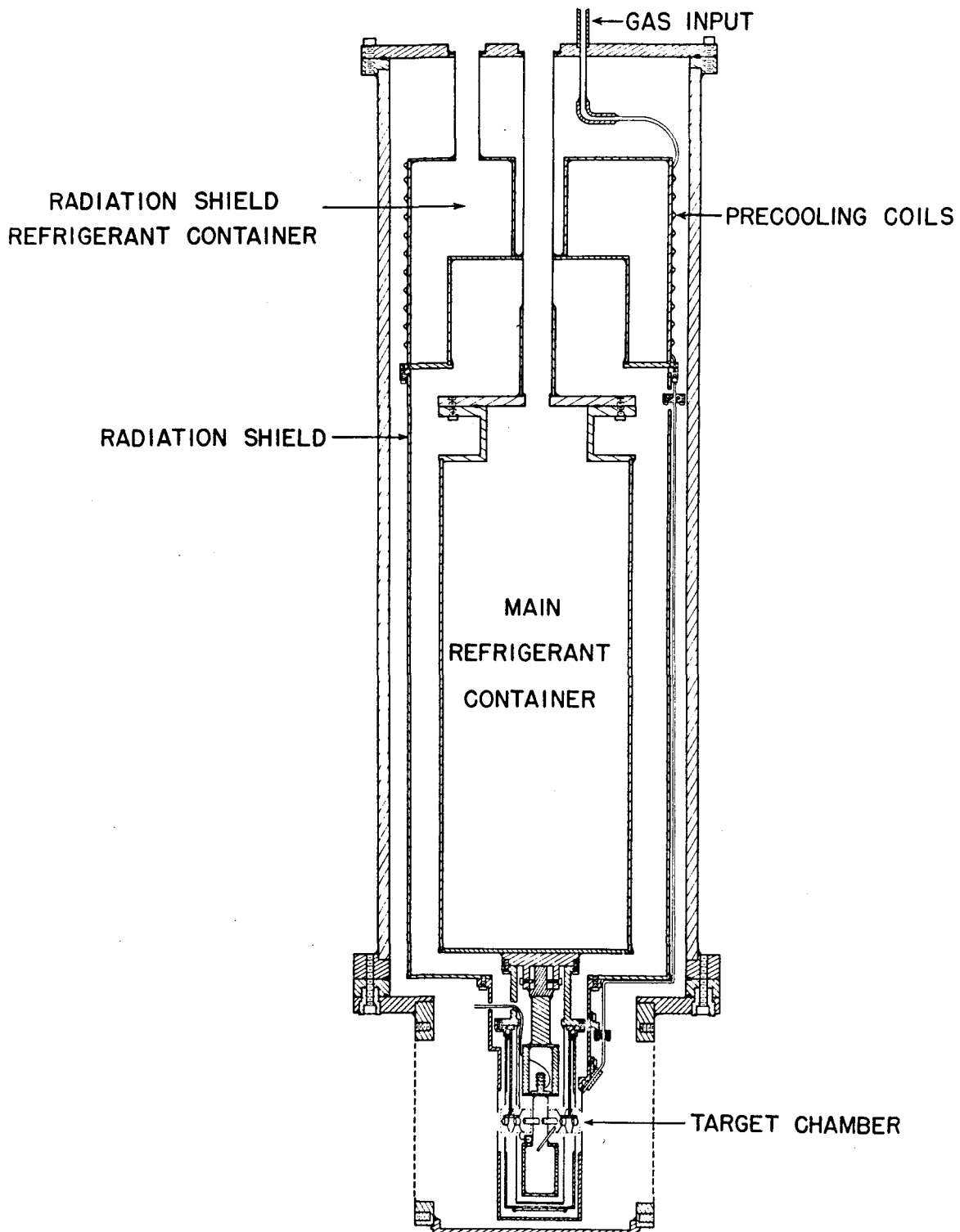
structure and therefore minimum thickness much greater than our beam energy spread. In order to use the resolution that the homogenizer gives us we had to be able to produce a thin uniform target where the beam energy loss was comparable to the beam energy spread and at the same time reduce the Doppler effect. The device that does this is a windowless gas target chamber using cryogenic techniques ⁴ which is shown in Fig. 4.

This device is a cryostat capable of holding liquid helium as the main refrigerant with a target chamber attached to the bottom. The idea here is to cool a target gas almost to its condensation point and to maintain a vapor over a very limited region where the reaction occurs.

A blow-up of the target chamber is shown in Fig. 5. Since for the most part we will be discussing argon, let us assume that this is the target gas. Argon is precooled to liquid nitrogen temperatures and bled into the cooling cavity which is maintained at 60°K by a heater and the heat input of the gas itself. The gas then escapes through the reaction tubes and is immediately frozen out of the system by the trapping cylinders which are at 4.2°K. The proton beam which has a diameter of 1.5 mm or about 1/16 inch is put through the target chamber where the hole diameters are 3 mm. It should be pointed out that the whole cryostat runs at homogenizer potential which is about 3500 volts. Another important feature is that one can put as much beam as he desires through the target chamber without any heating or deteriorating effects. To date we have put 25 μ amps through the target chamber with only 70 μ amps, down the tube. By placing a 4 π counter matrix around the cryostat we obtained the (p,n) yield curve for the reaction.

Fig. 6 shows the (p,n) yield of protons on Ar⁴⁰ using the windowless gas target chamber. The flow rate into

Figure 4.

**CRYOGENIC GAS TARGET**

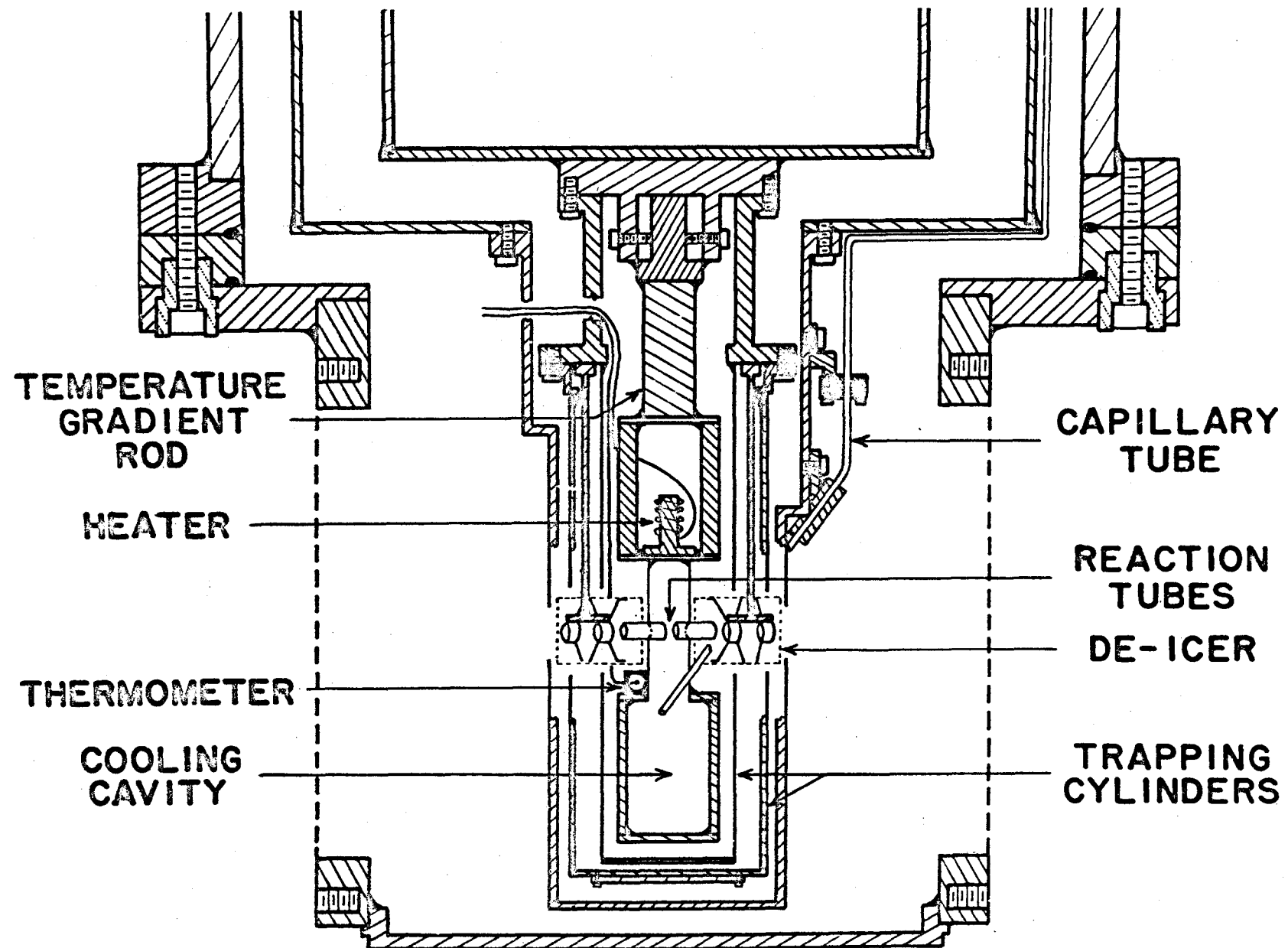


Figure 5

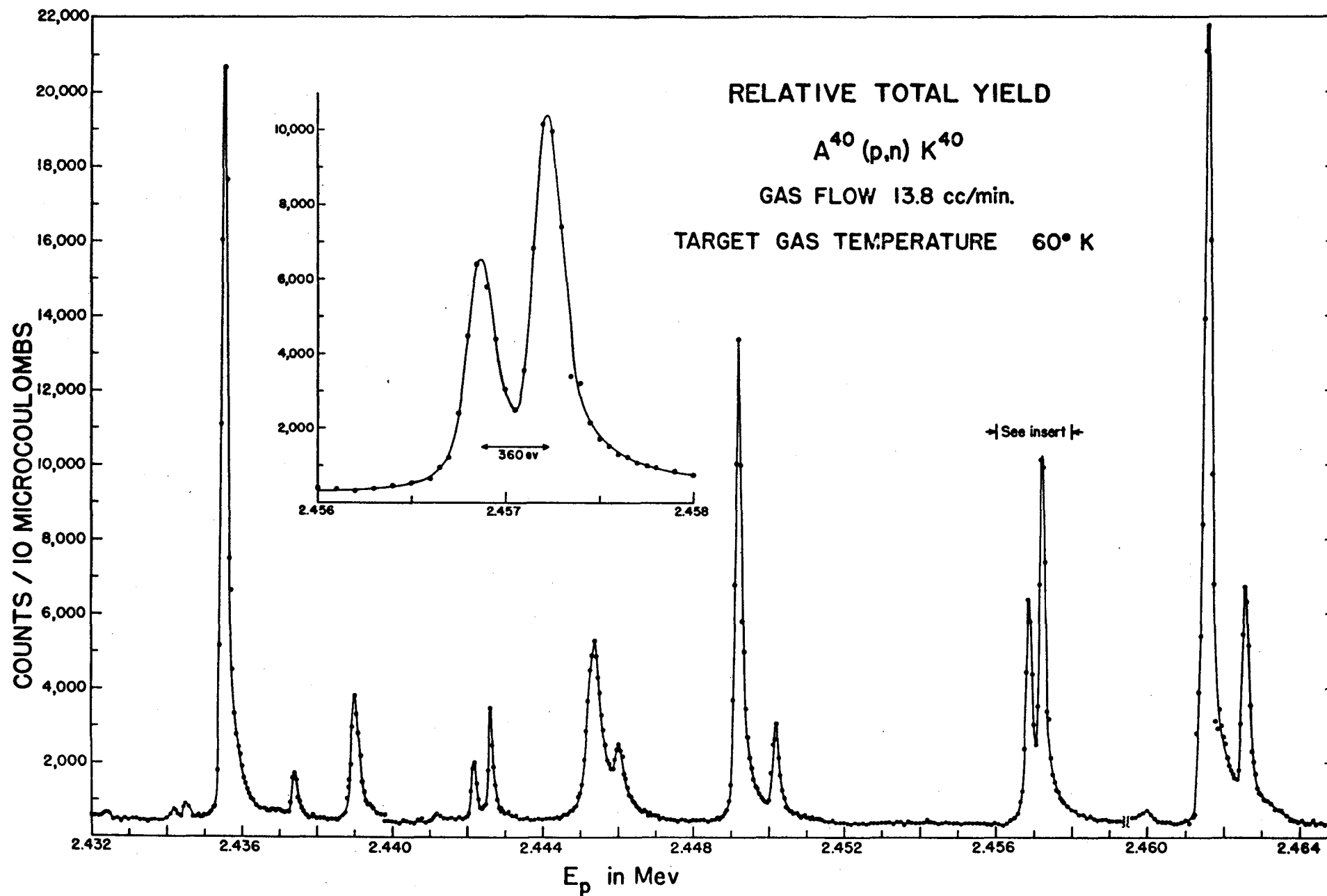


Figure 6

the cooling cavity was 13.8 cc per min. and the target temperature was 60°K. The total energy range here is 32 keV and most of these resonances have a total half width of about eV. The inset shows an energy range of 2 keV with two resonances separated by 360 eV. These data were taken with 50 eV energy steps over the resonances and 100 eV steps between resonances. The resonance at 2.4425 has a total half width of 140 eV. The target Doppler for this temperature is about 70 eV. If we assume the beam energy spread is 70 or 80 eV we are left with a target thickness of about 100 eV and we still have not taken into account the natural width of the level. We have been able to reproduce these data from day to day and by setting up the same gas flow we have been able to reproduce the peak counts within 10%/. The trapping action of the 4.2°K cylinder is excellent. If gas escaped beyond the target chamber we should see ghosts of the level because the target chamber runs at 3.5 keV and the surrounding volume is at ground potential. By comparing the integrated yield of this curve with the yield from an Argon cell we have been able to calculate that the target thickness is 3×10^{16} atoms per cm^2 , or about 1 μgram per cm^2 or a pressure about 100 μ . We have also reduced the gas flow by a factor of 4 but we see only a slight reduction in the total width. This shows that the target thickness is no longer the major contributor to the energy spread.

In Fig. 7 we show the same reaction around threshold.⁵ This figure is plotted on the same scale as the previous one and we should see the sudden disappearance of high yield levels. The calculation of the threshold from mass values places threshold at $2,353 \pm 1$ keV. We observed two levels below this value and suspected that threshold was probably even lower. We have an accurate method for measuring the threshold of this reaction. We produce neutrons at positions indicated by the levels in the

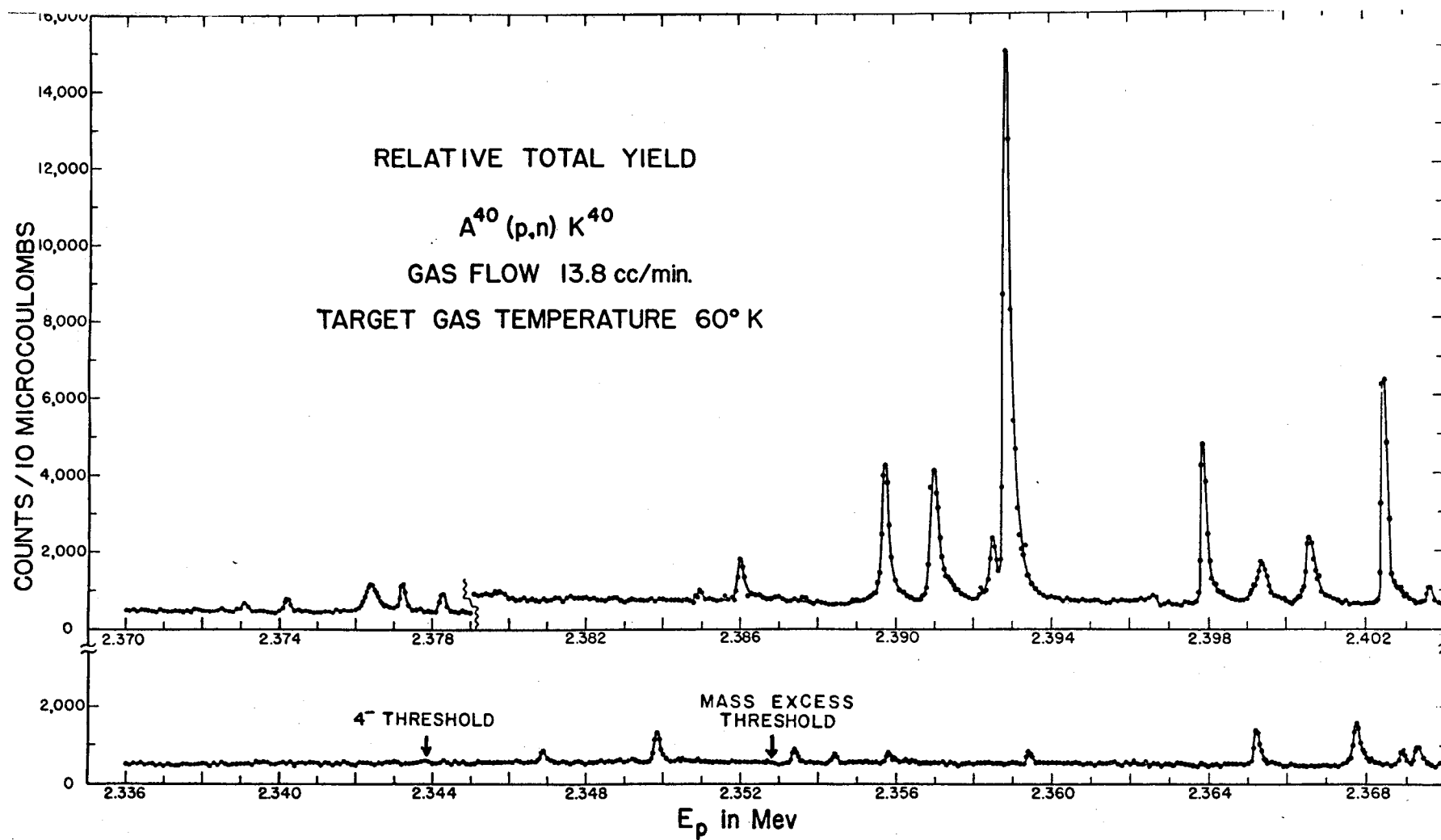


Figure 1

lower portion of this figure and use these neutrons in a transmission experiment on a sample of known total cross section. In this way we determine the energy of the neutrons at each level and since we know the proton energy we can then calculate a Q value for this reaction. In this manner we determine threshold for this reaction to be 2.344 MeV.

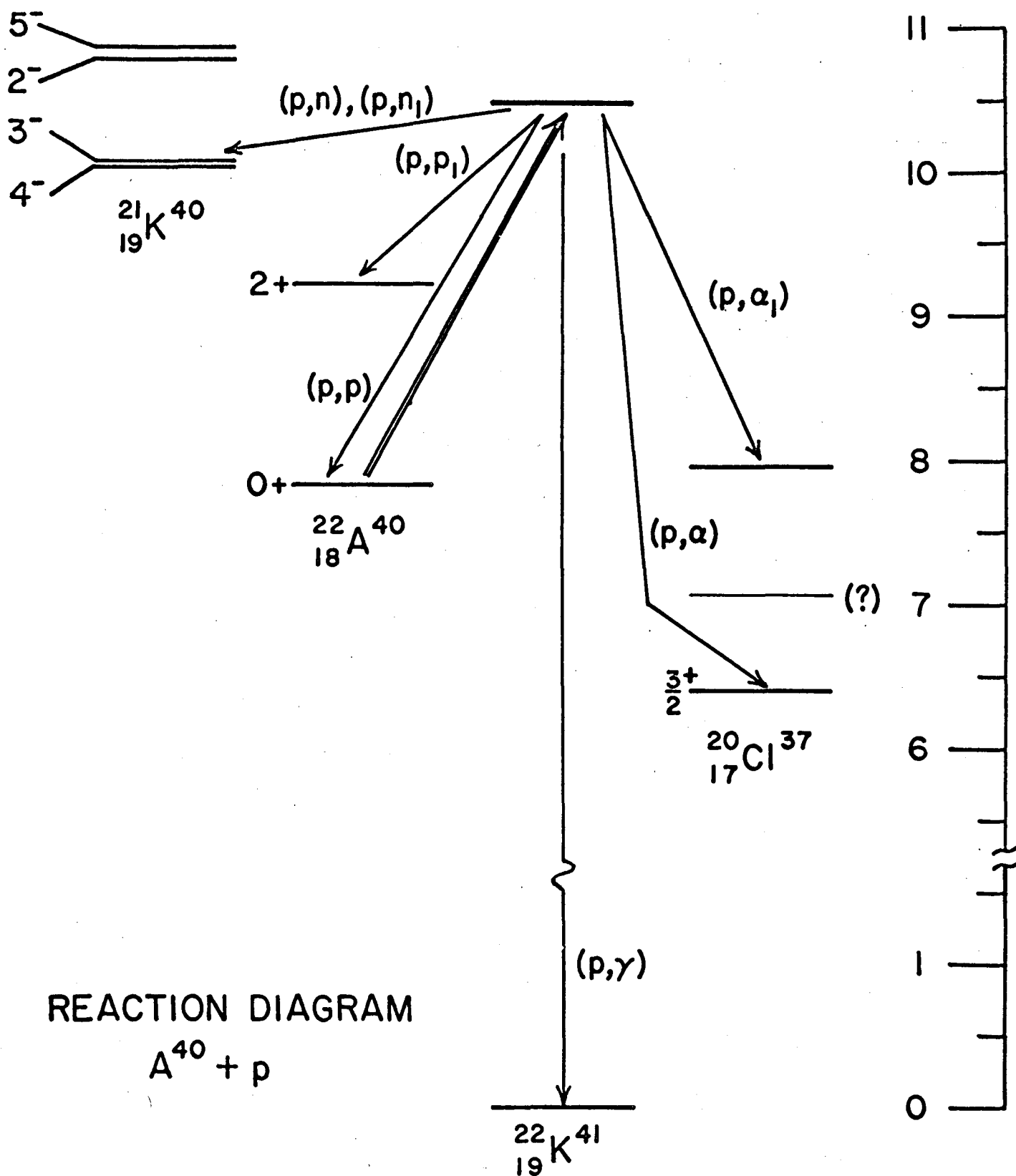
The reason the resonances are weak at threshold can be shown in Fig. 8. A^{40} has a spin of 0^+ and the residual nucleus K^{40} has a spin of 4^- . Therefore there is a high spin change involved in the (p,n) reactions and the proton energy is relatively low. If a proton with $\ell = 2$ goes into the nucleus the neutron would have to carry away at least 1 unit of angular momentum, and its penetration factor can reduce the yield of a level by a factor of a thousand or more near threshold. This slide also shows why we can only use the first few resonances in a transmission experiment since the first excited level of the residual nucleus is only 29 keV above the ground state.

Fig. 9 shows our transmission results using samples of Al and Fe. We obtain a best fit to our data when we assume a Q value of $-2.287 \text{ MeV} \pm \text{keV}$.

We have used other gases in the windowless gas target chamber. Among these are deuterium, boron trifluoride, methane and Freon-12. The latter gas was used to look at the Cl^{37} (p,n) A^{37} yield which is shown in Fig. 10.

In this case the main refrigerant was oxygen and the cooling cavity was run at a temperature of 140°K . With this target chamber each gas has its own properties and the operating temperature must be determined more or less empirically. In this figure we compare our data with that of Shoenfeld which was taken with a sodium chloride target in 1952. This figure is a good example of how different a curve can look because of the smearing effect of a thick target.

Figure 8



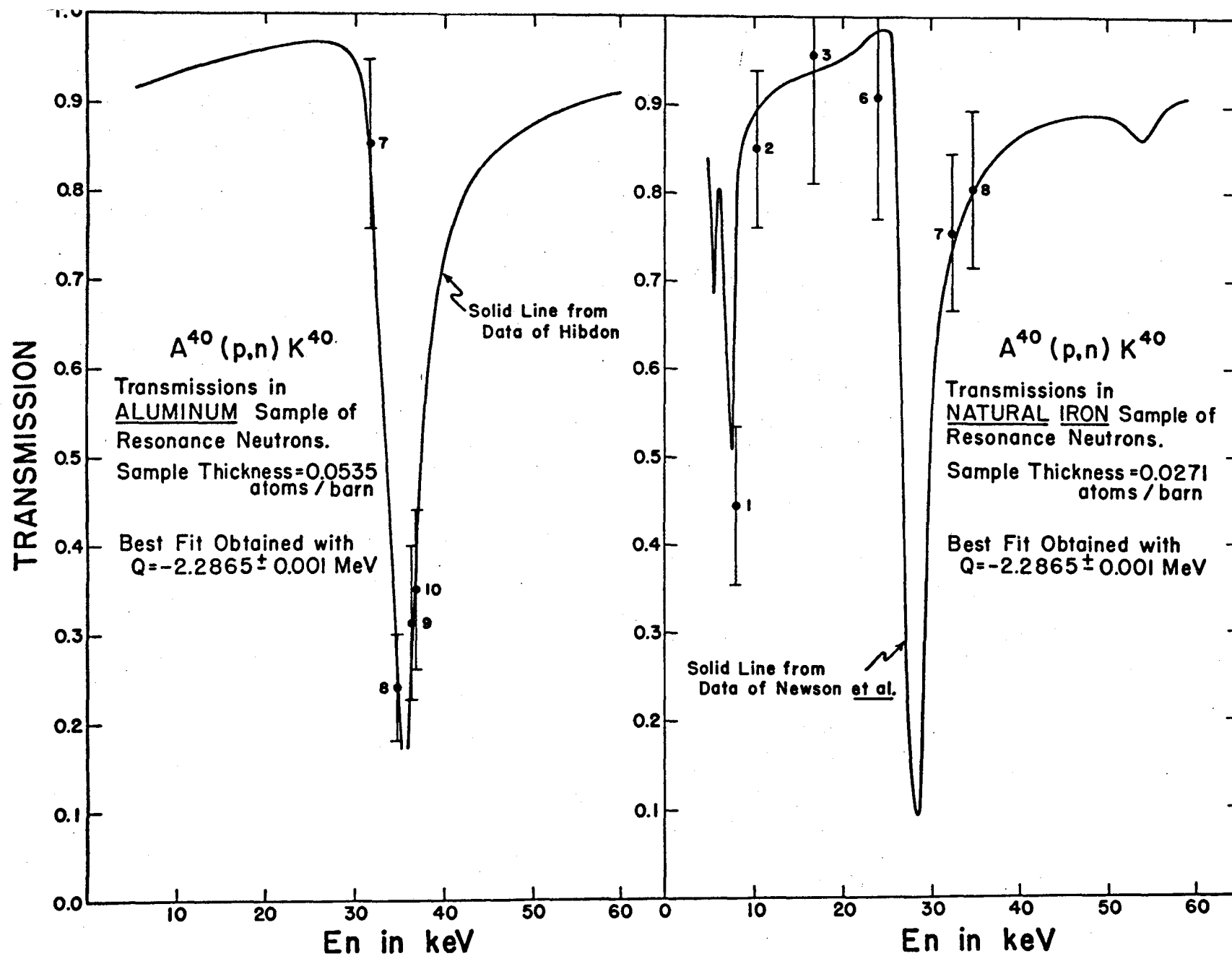


Figure 9

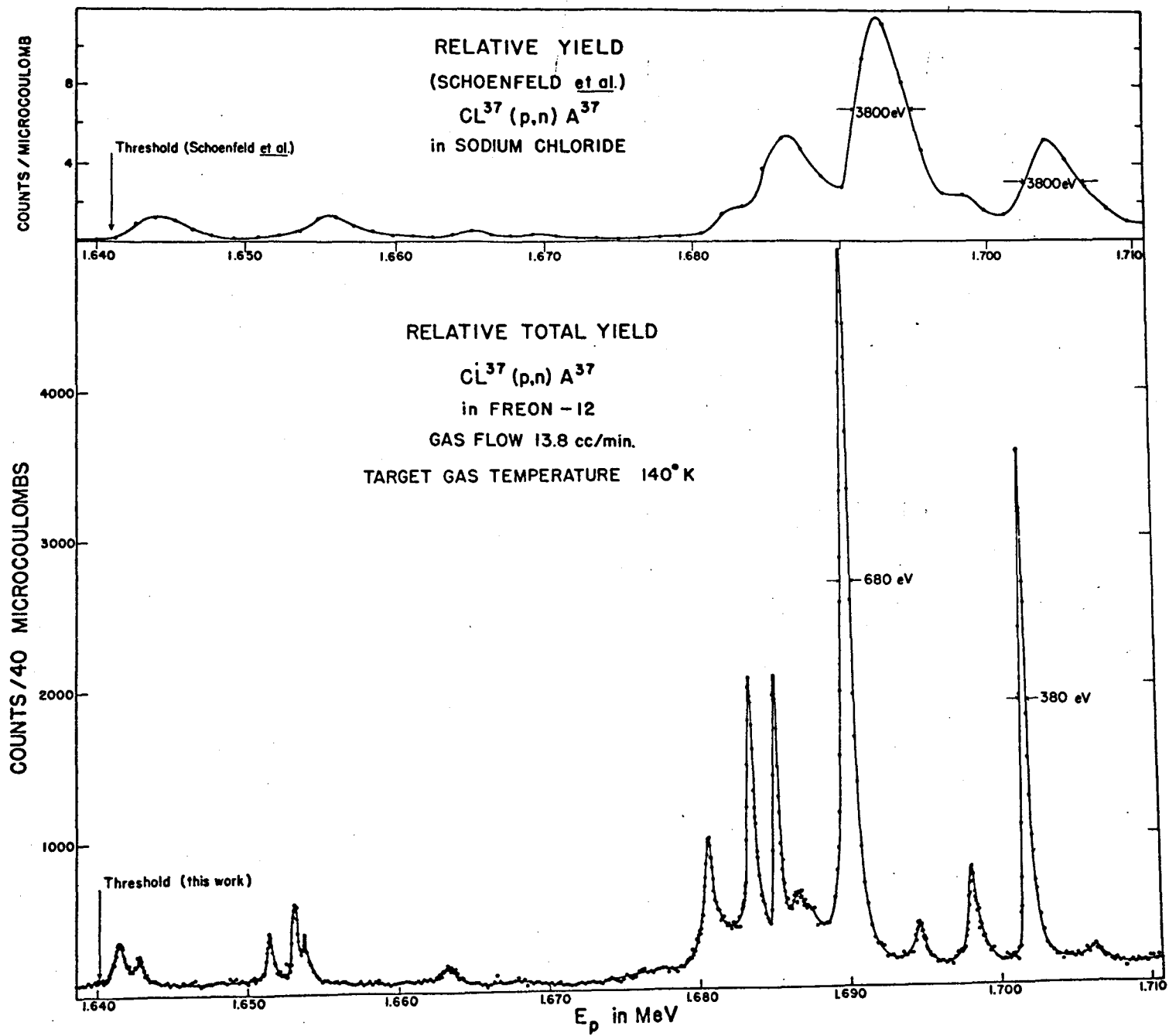


Figure 10

We also measured this threshold in the manner which we described and the threshold is indicated in the figure and is in agreement with Shoenfeld's data.

Early in this work we noticed that all the resonances in A have an asymmetric tail. An example of this is shown in Fig.11. Here we have reflected the first half of the curve into the second half and plotted the difference in the inset. This "difference" curve is characteristic of all the resonances in A. They rise in about 80 eV and the tail can be several keV long. Calculations by Eugen Merzbacher⁶ show that this amount of tail cannot be completely explained by discrete energy losses due to knock-out of k,l, and m electrons around the A nucleus.

Earlier we discussed the improvement in beam resolution with the homogenizer and the need of a thin target to demonstrate this improvement. Fig.12 shows the effect of the homogenizer on one of the Argon resonances.

The next step in this series of experiments was to use a limited amount of gas and recover it for recycling through the cryostat.⁷ In this way we could use rare and expensive gases as the targets. We originally started the development of the windowless gas target to produce a thin target for use as a neutron source in our total cross section experiments. The gas we finally decided to use was O^{18} since the thermodynamics would be worked out on natural O. O^{18} has several wide resonances in our energy range and it could be used as a neutron source over these limited energy regions. We therefore obtained one liter of this gas enriched to 65%.

Fig. 13 shows the floor plan for our experiments using O^{18} as the target gas. The position of the cryostat for the 40 yields is indicated. The gas was put into the target chamber at the rate of 5 cc per min. so that we had a

Figure 11

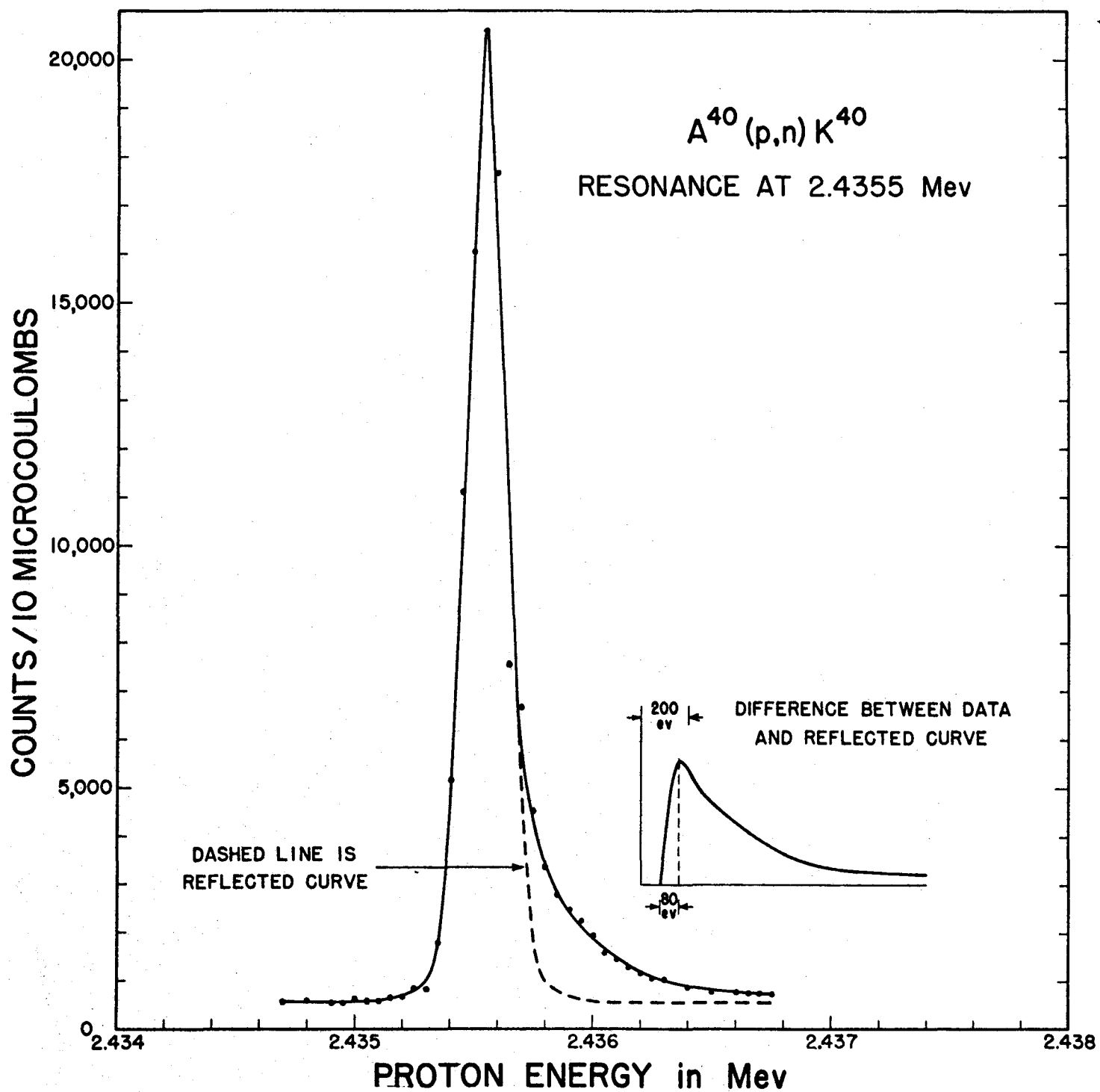
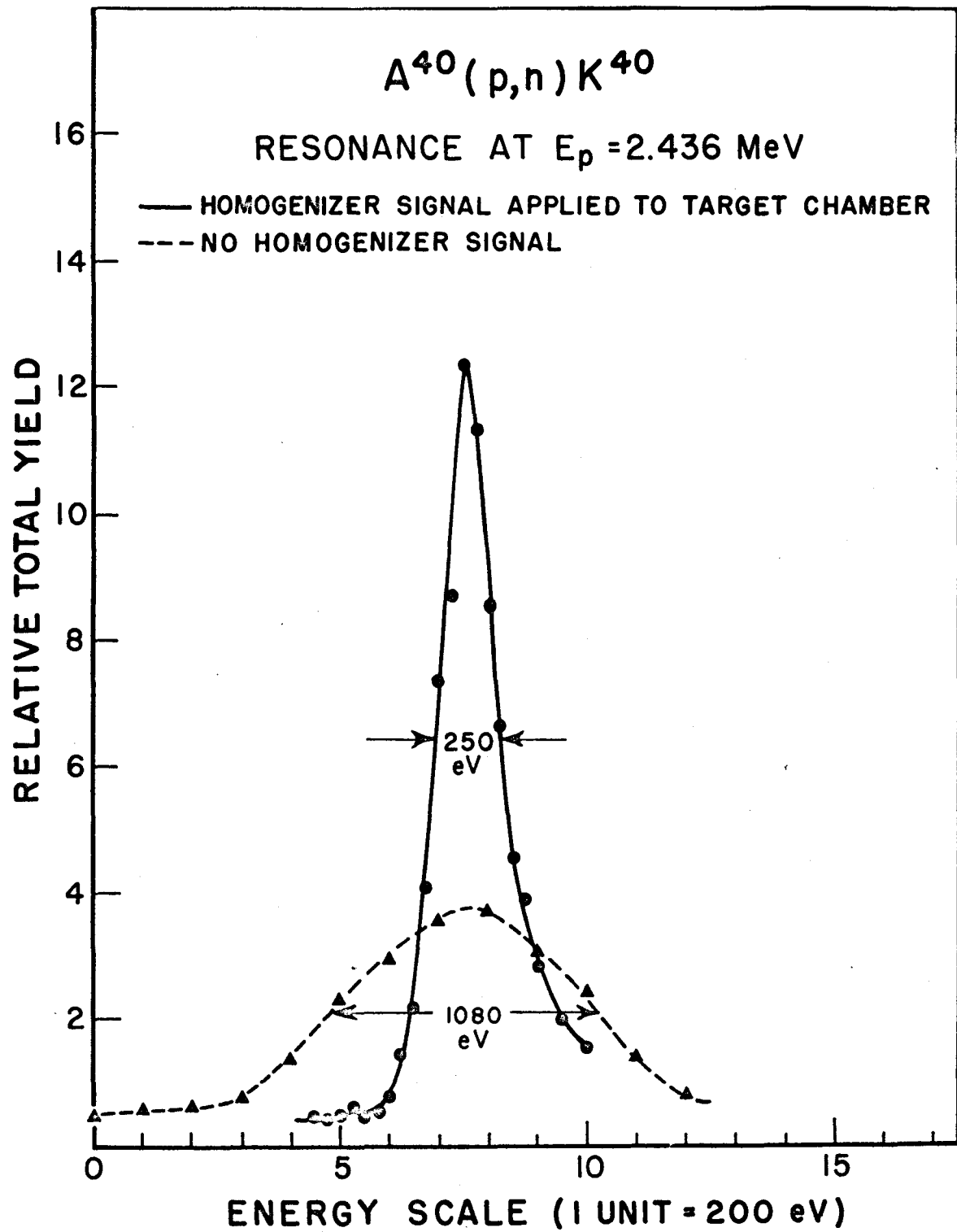
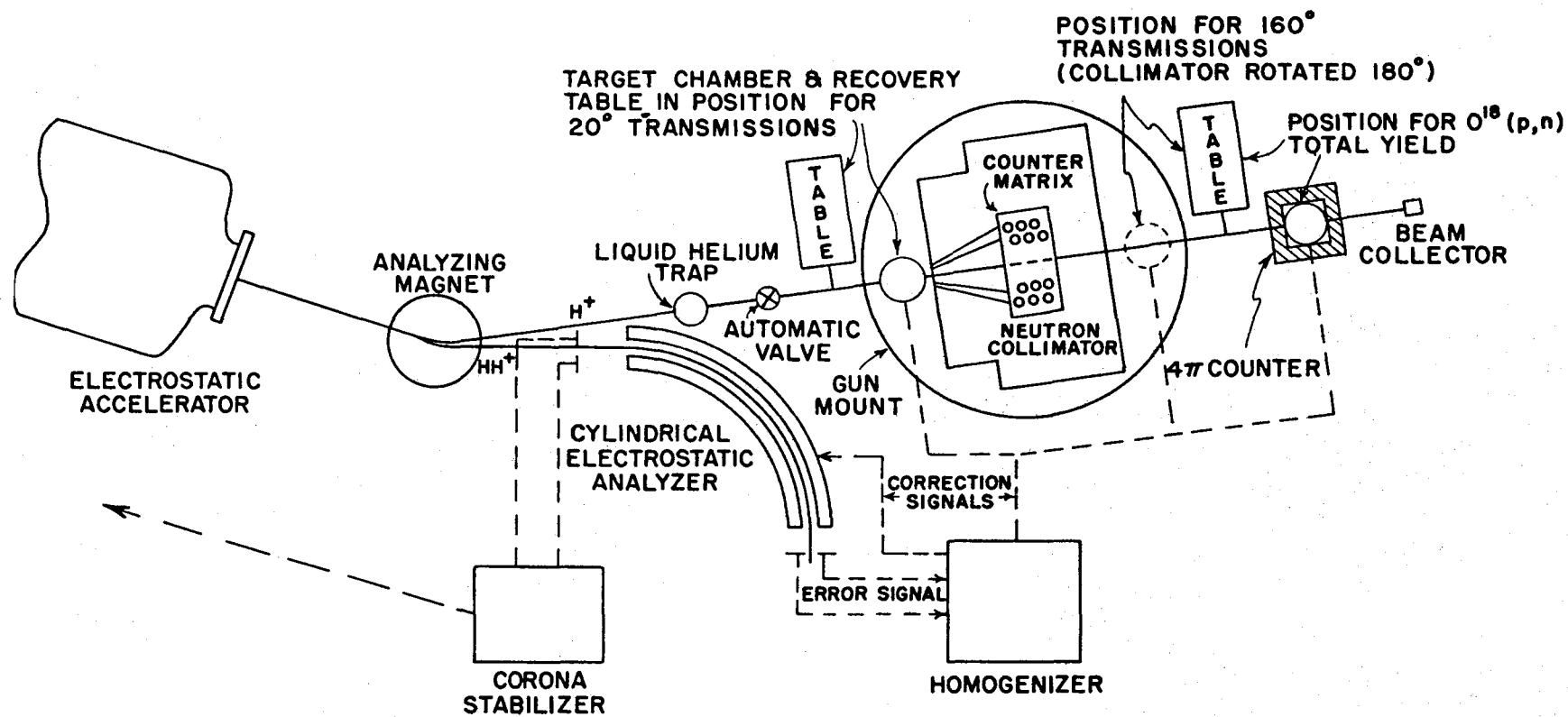


Figure 12





EXPERIMENTAL FLOOR PLAN

Figure 13

running time of about 2 1/2 hours. After this length of time the system was closed off from the machine and the cryostat was warmed to room temperature. The O^{18} which was frozen out on the trapping cylinders was released and pumped into a reservoir on the recovery table. The gas was then recycled. In case a leak developed while O^{18} was in the system an automatic valve that "sensed" the vacuum change would close isolating the O^{18} . With neutrons from this (p,n) reaction we did transmission experiments using our 20° - 160° neutron collimator. These positions are indicated in the figure.

Fig. 14 shows the 4π neutron yield of the reaction $O^{18} + p$ around threshold. The first resonance has a half-width of 6.5 keV and gives us a useful neutron energy range from 102 keV to 114 keV at 20° . The threshold of this reaction was again measured by the transmission technique and was found to be $2.576^{+0.001}$ MeV. The inset shows two small resonances where we had to increase the gas flow to get a higher yield.

Fig. 15 shows the yield as we go up in energy. The big resonance here has a half width of 26 keV. This gives a useful neutron energy range from 505 keV to 545 keV by using neutrons at 20° with respect to the proton beam and 290 - 307 keV using neutrons at 160° .

Fig. 16 is a top view of our setup for our transmission measurements using O^{18} (p,n) neutrons. It should be pointed out that the cryogenic target chamber is constructed entirely of 1 mil silver except for supporting rods. This is necessary to get the neutrons out of the target chamber to the detector with about 99% transmission. The transmission sample is placed between the detector opening and the cryostat.

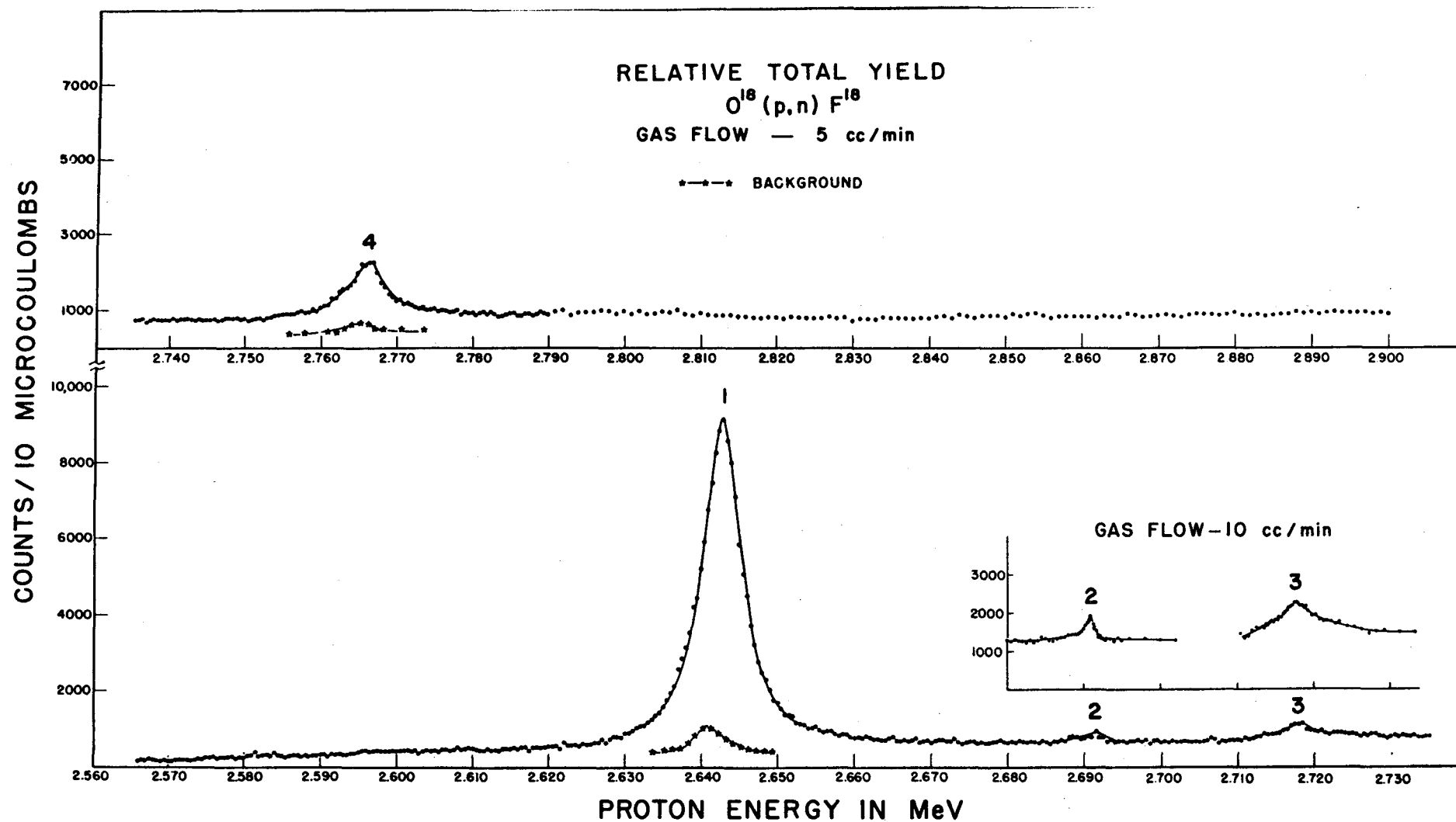


Figure 14

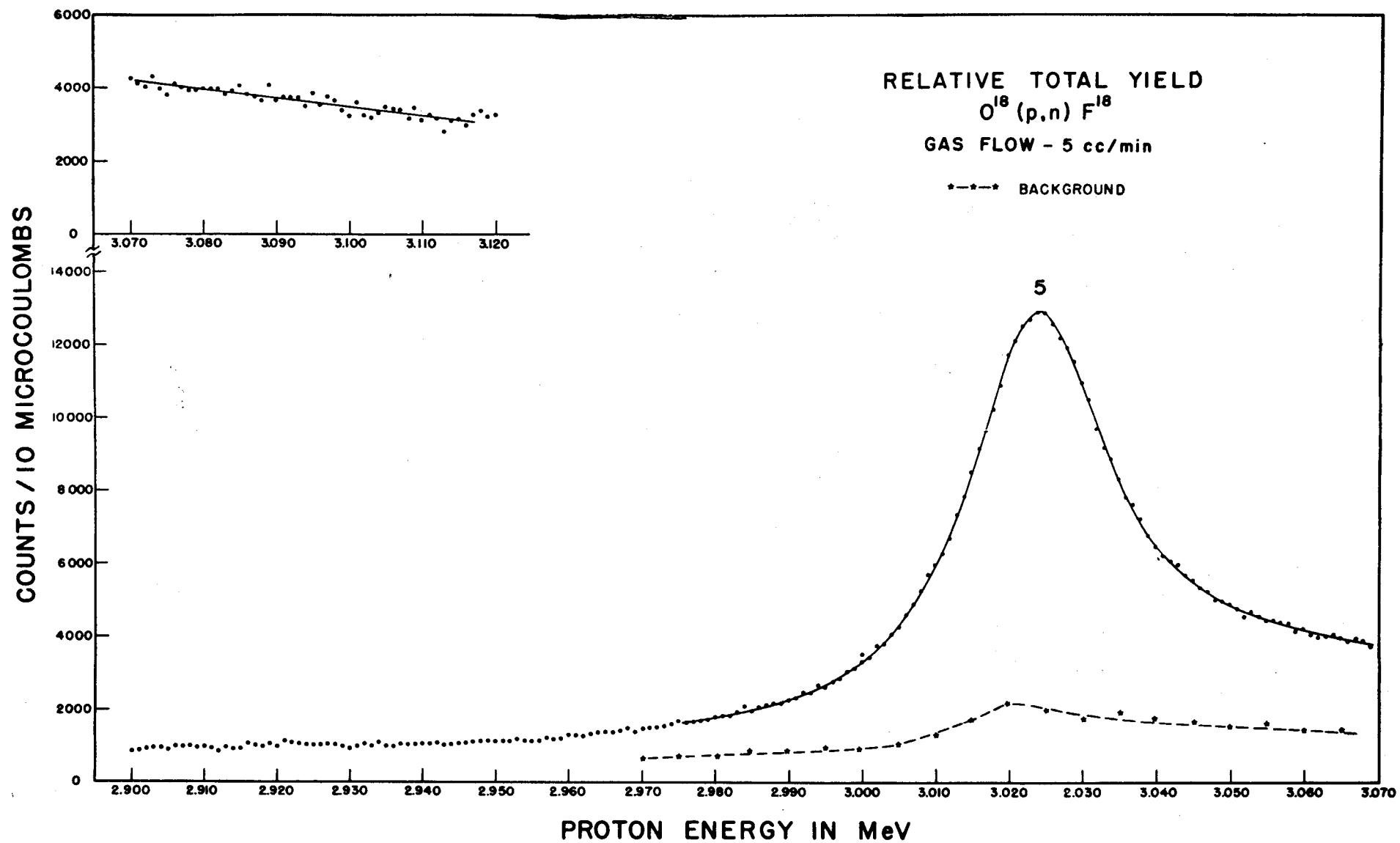


Figure 15

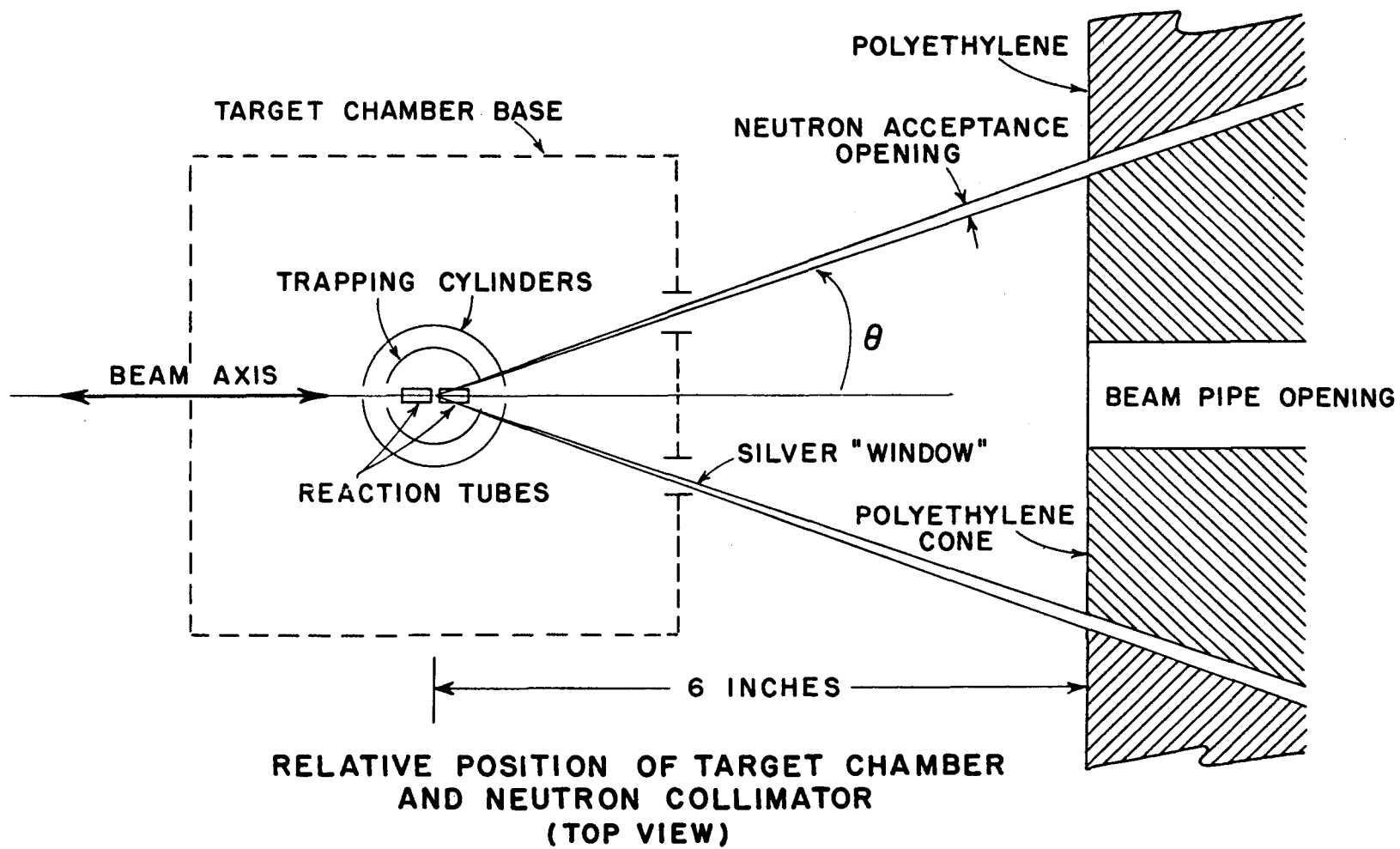


Figure 16

The type of data we obtained by using the first resonance in the O^{18} reaction is shown in Fig.17.

Here we have measured the transmission on strontium and observe the two resonances at 106 and 110 keV. To get an accurate determination of the Q value for $O^{18}(p,n)$ we used the position of these two resonances since their resonant energies have been measured several times with lithium targets.

Fig. 18 shows the transmission curve for iron using neutrons from the second big level in the $O^{18}(p,n)$ reaction. The neutron energies were calculated using the Q value obtained from the strontium data. This figure shows our older data taken with a lithium target and is shown by the open circles. Data taken with the gas target is shown by the solid circles and triangles. The overall neutron energy spread is about 500 eV and the improvement in resolution is very clear. By doing transmissions at 160° we can produce neutrons with better resolution since $\Delta E_n / \Delta E_p$ and $E_n / \Delta \theta$ are more favorable. However we are limited to neutron energies that occur only at the resonances in $O^{18} + p$. This is a disadvantage and we need a reaction with a high cross section as well as continuous yield as is the case with lithium.

Some possible candidates that meet these requirements are the $C^{13}(p,n)$ reaction, the $T(p,n)$ reaction and possibly the (d,n) reaction using D, C^{12} and O^{16} as the target gas.

Besides being able to produce targets less than $1 \mu\text{gram}/\text{cm}^2$, the windowless gas target chamber has other advantages. Among these are :

- (1) The target does not deteriorate.
- (2) Target gas density can be controlled from the console.
- (3) Large beams can be put through the target gas. The only limitation to the beam intensity is the accelerator capability.

Figure 17

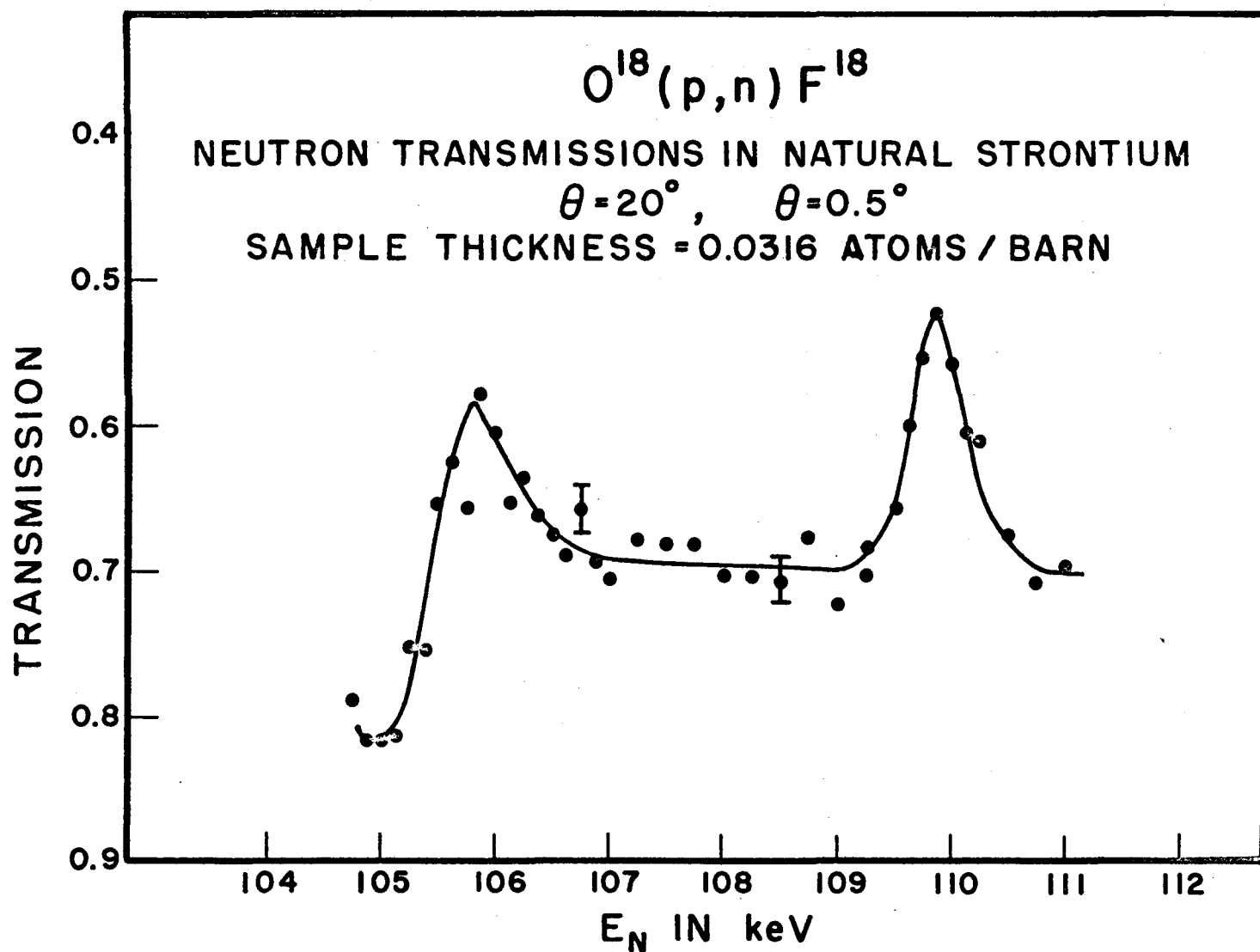
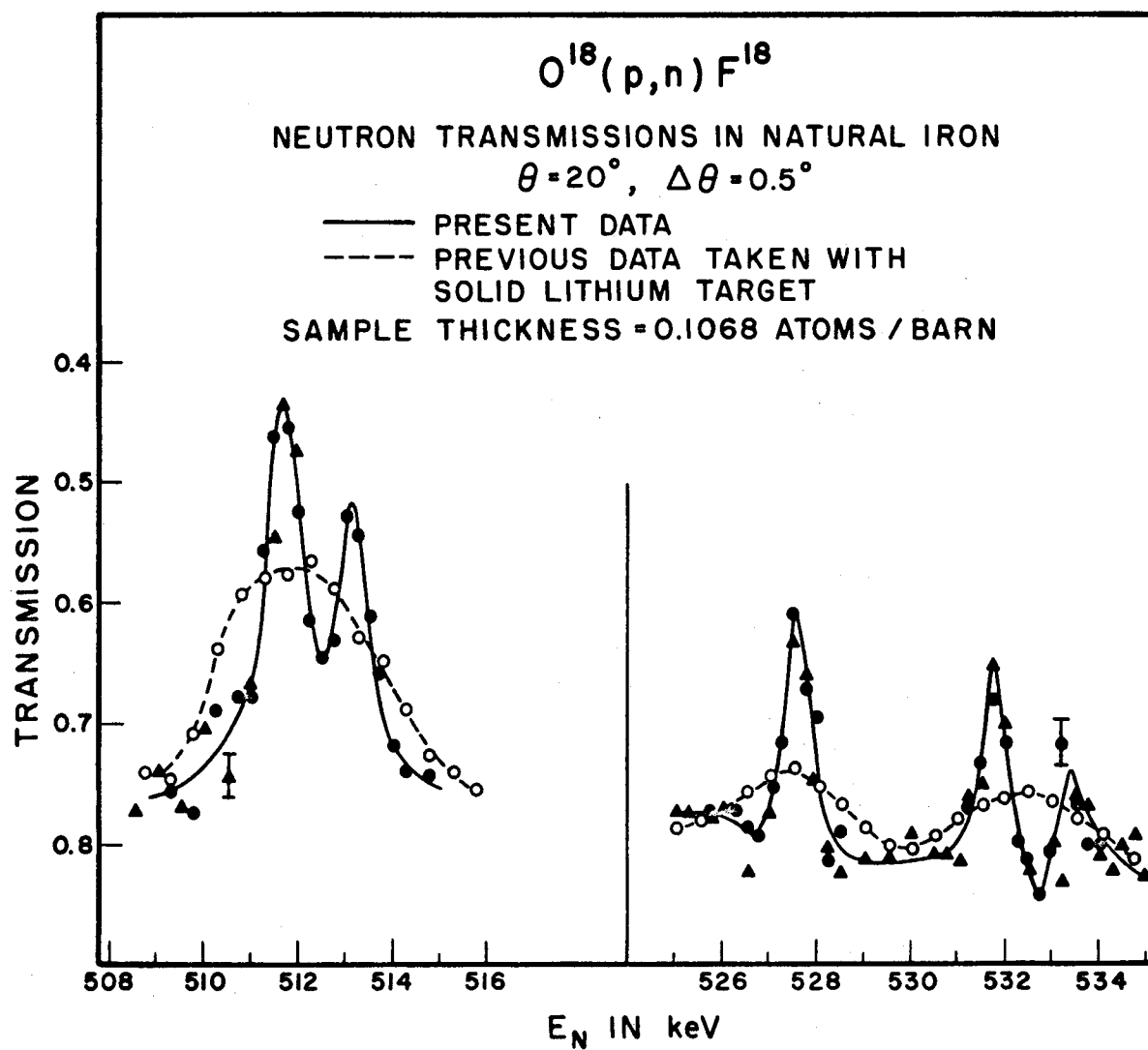


Figure 18



- (4) No cooling problem at the target
- (5) Beam integration takes places away from the target
- (6) Target Doppler is reduced by cooling the gas to low temperatures.

Several disadvantages are that the target must be a gas and preferably at low temperatures ($<100^{\circ}\text{K}$) and that the resolution limit for poly-atomic gases is not the gas density by the zero-point vibrational energy.

We have also used our techniques for an elastic scattering proton experiment. For levels which have a half-width greater than 200 eV we can assign spins and parities by inspection.

Acknowledgements

The experiments discussed in this paper were carried out over a period of several years and other members of our laboratory had a great deal to do with these developments. R.M. Williamson and P.B. Parks were mainly responsible for the "homogenizer", P.B. Parks, P.M. Beard, J.A. Farrell, and G.C. Kyker, Jr. for the cryogenic target chamber and total cross section experiments.

References

1. S.Datz, Oak Ridge National Laboratory (Private Communication) and A.V. Maskett, University of North Carolina (Private Comm.)
2. P.B. Parks, H.W. Newson, and R.M. Williamson, *Rev.Sci.Inst.* 29 834 (1958)
- 3a. G.C. Kyker and R.M. Williamson, *Rev.Sci.Inst.* 33, 872 (1962)
3. J.A. Farrell, E.G. Bilpuch and H.W. Newson, *Ann.Phys.* (to be published) 1965
4. P.B. Parks, P.M. Beard, E.G. Bilpuch and H.W. Newson, *Rev.Sci.Inst.* 35, 549 (1964)

5. P.B. Parks, P.M. Beard, E.G. Bilpuch and H.W. Newson,
Nucl. Phys. (to be published) 1965.
6. E. Merzbacher, University of North Carolina (Private Comm.)
7. P.M. Beard, Ph.D. Thesis, Duke University, unpublished.

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

Je pose à nouveau la question : y a-t-il des orateurs sur la question des cibles de beryllium ? après quoi nous traiterons des autres cibles.

Monsieur FLEISCHER

Just a brief example of what a cyclotron can do :
A 100 microamp. beam of 7,5 MeV deuterons on a beryllium target can produce about four times 10^{11} neutrons per second per steradian at ten plus or minus a half MeV.

Monsieur PETER

Ich glaube, wir reden hier immer um Maschinen, was Maschinen tun können, ob Maschinen gut sind für einen bestimmten Zweck oder nicht, worüber wir uns hier unterhalten wollten, war eigentlich Targets. In dem Fall Berylliumtargets. Das Problem, dem sich heute jeder Beschleunigerbenützer gegenüber sieht, ganz egal, welchen Beschleuniger er benützt, ist doch, dass die z.Zt. zur Verfügung stehenden Targets nicht genügend belastet werden können. Meines Wissens gibt es heute nur ein einziges Berylliumtarget auf dem Markt, das kommerziell verfügbar ist, das überhaupt 1 kW aushält. Aber dieses einsame Berylliumtarget löst diese Probleme nicht. Herr WIESNER hat vorhin die Frage nach einem Lithiumtarget angeschnitten und das gilt auch für die ganze Serie von Targets, die hier noch auf Ihrem Programm aufgeführt sind. Es wäre durchaus möglich, heute Reaktionen mit

hohen energetischen Neutronen, mit grossen Neutronenflüssen herzustellen von der Seite der Beschleuniger her. Aber, es hat sich leider bisher kein Hersteller, kein Targethersteller gefunden, der den Beschleunigerbenützern solche Targets anbietet. Z.B. kenne ich kein Lithiumtarget, das mehr als 20 W aushält und ich glaube, Monsieur GODAR hat einmal versucht, irgendwelche Laboratorien zu befragen, die in der Lage sind, mit Lithiumtargets grössere Neutronenmengen herzustellen und er hat 160 Laboratorien und Institute angeschrieben und ich glaube, von insgesamt 3 eine positive Antwort bekommen. Das zeigt doch eigentlich das wirkliche Problem, worüber wir uns hier unterhalten sollten. Wir sollten uns nicht unterhalten, wann Zyklotron gut ist, oder ein Van de Graaff gut ist, oder eine Kaskade gut ist. Danke.

Monsieur CHRISTALLER

Wir haben in unserem eigenen Labor für Zwecke auch der Aktivierungsanalyse neutronenproduzierende Berylliumtargets konstruiert, die es erlauben, etwa 35 - 40 μ A Deuteronenstrom bei einer Energie von 50 MeV Deuteronen aufzunehmen, und auch das Kühlungsproblem für diese Targets ist bei uns gelöst. Ein weiterer Punkt, das ist an sich der Punkt 11, wir haben auch Kohlenstofftargets hergestellt, die ja sehr einfach handzuhaben sind, weil sie nicht schmelzen. Man kann sie also mit sehr hohen Strömen beaufschlagen. Hier ist lediglich ein einziges Problem, nämlich, wie man die zu bestrahlende Substanz gegen die Strahlungswärme vom Kohlenstoff her abschirmt. Dieses Problem ist bei uns mit einer dünnen Wasserwand zwischen dem Kohlenstofftarget und dem zu bestrahlenden Target, für Aktivierungsanalysen zum Beispiel, gelöst worden.

Monsieur FLEISCHER

Getting back to targets. Is there any practical limit to the amount of neutron yield that the people here

desire and are most of the people here interested only in the DT reaction or do they want to get into other neutrons reactions ? Is the object to get as many neutrons as possible at any cost or what is the object ?

Monsieur STEELE

I might just answer that. The object is to get enough neutrons to do the job and no more, preferably. The idea of variable targets that we would like, brings up the point that the gentleman just mentioned. I have no interest in machines as such. All I care is, can I get the neutrons that I need to produce the product that tells me what was in the sample. And that is my sole interest in neutrons. If the cyclotron will do it, fine. If a linear machine will do it that's alright too. My interest is a target that does not wear out every hour. If I cannot find one, I would like to be able to get the neutron energy best suited for the job. I'm perfectly willing to change targets as often as necessary to eliminate interferences. What I described was just material put in a cell. I have no idea whether that cell will take a 100 μ A. But I do know that it will take a tenth of a microampere for ten hours. Now you cannot extrapolate that of course, but my interest is in short radiation: just enough neutrons to do the job.

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

Je remercie Monsieur STEELE de bien reposer le problème sur le fond, et puisque Monsieur CHRISTALLER a proposé des cibles pour cyclotrons qui supportent des puissances élevées, il serait souhaitable qu'il veuille bien donner quelques renseignements, au besoin technologiques, sur ces cibles.

Monsieur CHRISTALLER

Wenn der Herr Vorsitzende gestattet, kann ich einige Bilder der Konstruktionen zeigen, (1) die in unserem Labor gemacht worden sind. (Fig.1) Diese Targetkonstruktionen wurden gezeigt auf der Konferenz in Eindhoven im April ds.Js. Es handelt sich dabei um Einzelstücke, die als Labormuster gebaut worden sind, um vor allen Dingen die thermische Belastbarkeit zu untersuchen. (Fig.3) Dieses erste Target ist ein Target, um pulverförmige Substanzen bestrahlen zu können, die in diesem Zusammenhang nicht so interessant sind. Es wäre vielleicht morgen interessanter. Es wird hier in diese kleine Röhre eine pulverförmige Substanz eingesetzt, die Wand ist ausserordentlich dünn, so dass die pulverförmige Substanz mit Deuteronen bestrahlt werden kann. Interessant ist dieses Target. (Fig.2)

Der Keil hier ist aus Beryllium, das auf Kupfer aufgelötet worden ist und direkt hinter dem Beryllium ist die zu bestrahlende Substanz, also etwa für eine Aktivierungsanalyse oder ähnliches. Das Target, was ich vorhin erwähnte, das Kohlenstofftarget, ist dieses hier. (Fig.6) Rechts ist das eigentliche Kohlenstofftarget, dazwischen eine Wasserwand, die das zu bestrahlende, mit Neutronen zu bestrahlende Target kühlt. Die Probleme sind bei uns insofern etwas schwieriger, als sämtliche Targetshalterungen fernbedienbar abfahrbar sein müssen aus dem eigentlichen Raum, wo das Zyklotron steht. Daraus resultieren die Konstruktionen, die überall unten einen entsprechenden Flansch haben, an dem eine

Paper presented by W. KUHN et al. at the european conference on AVF - cyclotrons. 21.- 23. April 1965 in Eindhoven.

Figure 1
Bestrahlungspositionen

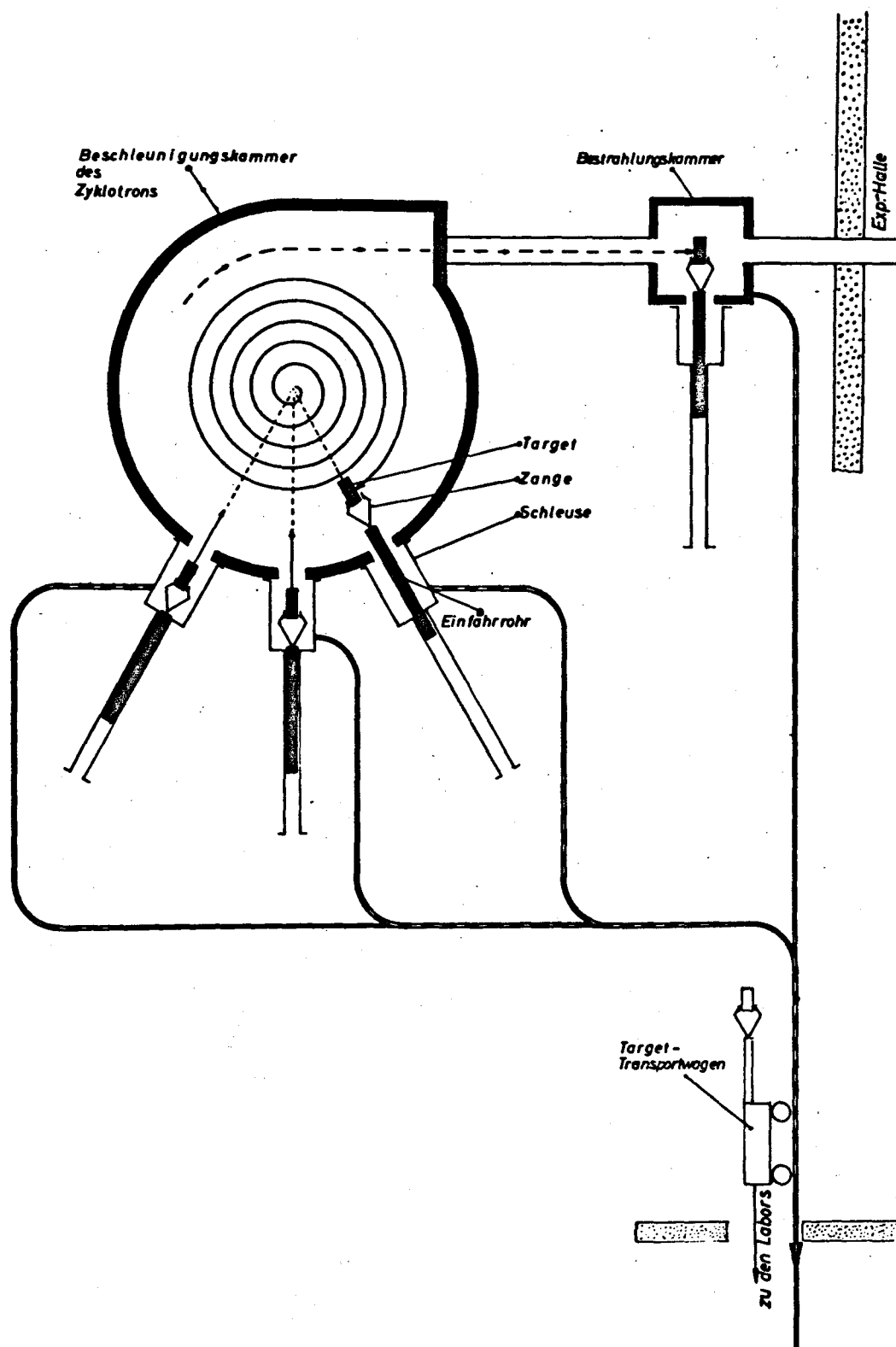


Figure 2, 3 & 6

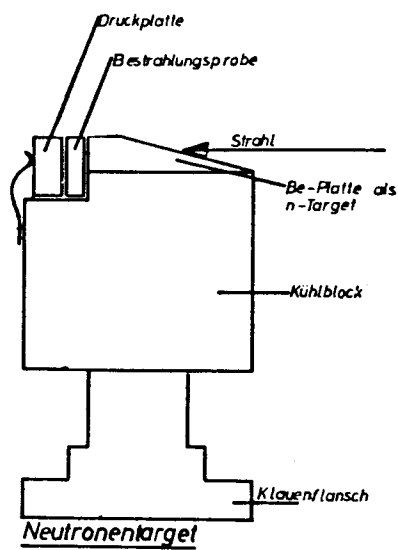


FIGURE 2

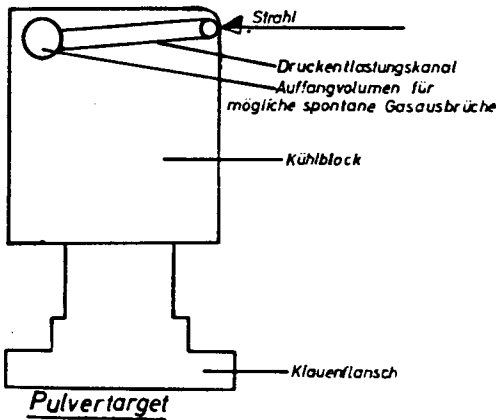


FIGURE 3

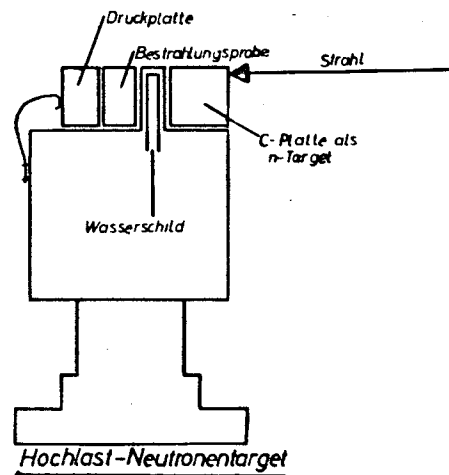


FIGURE 6

automatisch bedienbare Targetbahn ansetzen kann, um das Target in Bestrahlungsposition zu bringen, und nach der Bestrahlung wieder abfahren kann in ein Heisslabor, wo man dann das bestrahlte Target aus dem entsprechenden Kopr herausnehmen kann zur Weiterverarbeitung. Die Zeit, die die Bahn in diesem Fall braucht, beträgt etwa 1 - 2 Minuten. Wenn Sie gestatten, möchte ich aber noch etwas sagen zu dem allgemeinen Streit, welchen Beschleuniger man nehmen soll. Ich glaube, dass heute vor allen Dingen in vielen Forschungszentren Maschinen erstellt werden, die es den verschiedensten Instituten auf diesen Forschungszentren ermöglichen, diese Maschinen auch für ihre Zwecke zu benützen. Da ist die Frage des Preises für eine solche Maschine, wenn man einen bestimmten Neutronenfluss haben möchte, etwas irrelevant, weil eben sehr häufig eine solche Maschine irgendwo, und sei es auch 50 km entfernt, zur Verfügung steht, wo man entsprechende Bestrahlungen durchführen kann. Danke schön.

Monsieur WIESNER

Den Ausführungen von Herrn CHRISTALLER kann man sich nur dann anschliessen, wenn die Aktivierungsanalyse in erster Linie als Forschungsobjekt betrachtet wird. Es ist aber wohl nur dann sinnvoll Analysenmethoden zu entwickeln, wenn die Voraussetzungen für die praktische Anwendung vor allem auch in der Industrie vorhanden sind.

Bei Überlegungen über die praktische Anwendung eines Analysenverfahrens werden aber die Vorteile, die es zu bieten vermag, sehr sorgfältig mit den Investitions- und Betriebskosten verglichen, die es erfordert. Im Prinzip gibt es eine ganze Reihe von Möglichkeiten für die industrielle Anwendung der Aktivierungsanalyse, bei denen in einem einzelnen

Werk 50 oder 1.000 Proben täglich untersucht werden müssten. Wenn man jedoch einen 10^{11} Neutronen/sec liefernden Generator mit Tritiumtargets in drei Arbeitsschichten betreibt, betragen die Targetkosten täglich DM 2.000 oder DM 3.000.--. Ausserdem stört der häufige Wechsel des Targets den Betriebsablauf.

In einem solchen Fall kann es durchaus sein, dass ein wesentlich teurer Beschleuniger, bei dem aber wegen einer höheren Beschleunigungsspannung auch andere Targets zur Neutronenerzeugung verwendet werden können, die wirtschaftlichere Lösung des Problems darstellt, wenn dadurch die Targetkosten auf täglich DM 50.-- oder DM 100.-- gesenkt werden können. Dieser Gesichtspunkt der Wirtschaftlichkeit ist u.E. bei den zahlreichen Entwicklungsarbeiten über die Aktivierungsanalyse im allgemeinen und über Targetprobleme im besonderen nicht immer genügend beachtet worden.

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

Monsieur GODAR a quelque chose à demander à Monsieur CHRISTALLER. Il pourrait peut-être nous faire profiter également des résultats de l'enquête qu'il a faite auprès des fabricants de cibles lithium.

Monsieur GODAR

Je voudrais, d'une part, demander à Monsieur CHRISTALLER de nous fournir une description détaillée des cibles qu'il a utilisées; ensuite nous dire quelle est l'intensité maximale susceptible d'être supportée par la cible, éventuellement le flux total de neutrons obtenu, et éventuellement le spectre énergétique des neutrons obtenus.

Monsieur CHRISTALLER

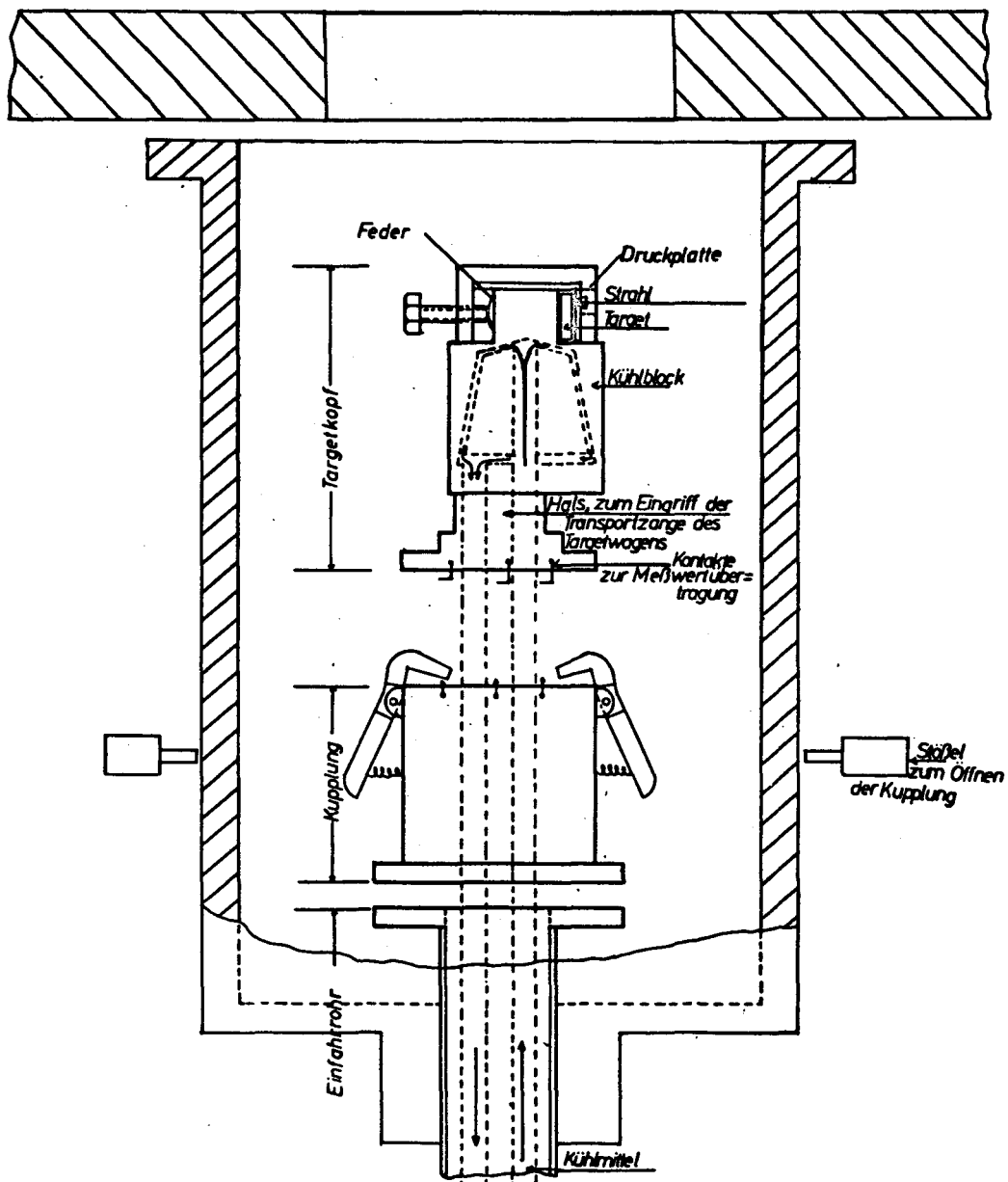
Um die erste Frage zu beantworten, hier ein kleines Bild, (Abb.4) wie die Targetkonstruktionen grundsätzlich bei uns aussehen: Sie sehen die Stange, die das Target in das Vakuum der Zyklotronmaschine hineinbringt, und die entsprechende Halterung. Sie erkennen auch den Flansch wieder, den ich Ihnen eben zeigte. Durch das Rohr wird eine Wasserleitung geführt, zentral die Zuleitung, zu beiden Seiten herunter die Ableitung des Wassers, das in einen Ring gesammelt wird und wieder abgeführt wird. Es ist in diesem Fall ein anderer Targetkopf gezeichnet. Die Targetkonstruktionen, die Targetkopfkonstruktionen sind bei uns bezüglich der Kühlung normiert. In dem speziellen Fall des Berylliumtargets handelt es sich um einen Berylliumkeil, den wir von der Firma "DEGUSSA" haben herstellen lassen in der von uns gewünschten Form. Es ist dann in unserem Institut auf einem Kupferkopf hart aufgelötet worden. Dadurch, dass die Wasserkühlung vorhanden ist, hat bisher das Hartlot auch immer gehalten und es haben sich auch nach stundenlangem Betrieb,- dieses Target ist bisher insgesamt etwa 100 Stunden bei 20 - 30 μ A in Betrieb gewesen, summiert über mehrere Monate Bestrahlungszeit mit einigen Pausen zwischendrin, es haben sich also bisher keinerlei Veränderungen in irgend einer Form bemerkbar gemacht, weder am Beryllium, noch am Hartlot.

Zu der zweiten Frage über die Neutronenausbeute und auch evtl. über das Energiespektrum, kann ich nur sehr vorläufige Angaben machen. Es sind im Augenblick Messungen darüber im Gange, die noch kein deutliches Bild zeigen. Immerhin kann ich eine Angabe machen, die, sagen wir, auf 50% etwa stimmen sollte. Bei einer Deuteronenenergie von 50 MeV entsteht an Beryllium etwa 0,1 Neutron pro aufgeschossenes Deuteron.

Figure 4

TARGETHALTERUNG UND TARGETKUHLUNG

VAKUUMKAMMER



Wir haben entsprechende Messungen auch an Kohlenstoff gemacht. Hier ist die Ausbeute sehr ähnlich. Genaue Messungen liegen darüber noch nicht vor. Das Spektrum ist bei uns sehr roh gemessen worden mit Schwellwertdetektoren. Einmal durch Kupferaktivierung nach der Texaskonvention so ungefähr, obwohl sie damals noch nicht bestanden hat, und einmal mit der $C^{12}(n,2n)C^{11}$ Reaktion. Die Reaktion hat eine Schwelle bei ungefähr 20 MeV. Daraus kann man etwa folgendes Bild ableiten: Fig.8, das in guter Übereinstimmung mit den Berechnungen steht (1). Das Neutronenspektrum hat ganz offensichtlich zwei sehr ausgeprägte Maxima, über eine Feinstruktur können wir nichts aussagen, weil die Methode der Schwellwertdetektoren dafür zu roh ist. Es gibt einen Peak, der von der Compoundkernbildung herrührt, also Verdampfungsneutronen, die auch winkelisotrop sind. Dieser Peak liegt ungefähr bei 5 MeV und es gibt einen weiteren Peak, der von der Strippingreaktion herkommt, der liegt bei etwa 20 MeV. So etwa würde das Spektrum ungefähr ausschauen. Wie das Spektrum bei anderen Targets aussieht, kann ich im Augenblick nicht sagen. Es werden Untersuchungen gemacht mit Kohlenstofftargets, auch mit ganz einfachen Kupfertargets, wobei ich nur noch etwas angeben kann über die Neutronenausbeute. Sie unterscheidet sich bei 50 MeV Deuteronen nicht grundsätzlich, d.h. also nicht um eine Größenordnung, sondern offensichtlich nur um Faktoren, d.h. Kohlenstoff hat eine sehr ähnliche Neutronenausbeute wie Beryllium, Kupfer eine etwa den Faktor 2 - 3 niedrigere Neutronenausbeute. Das ist das, was ich sehr vorläufig dazu sagen kann.

(1) H.J. LANGMANN. Nukleonik 3 (1961) 201 - 204

Figure 7

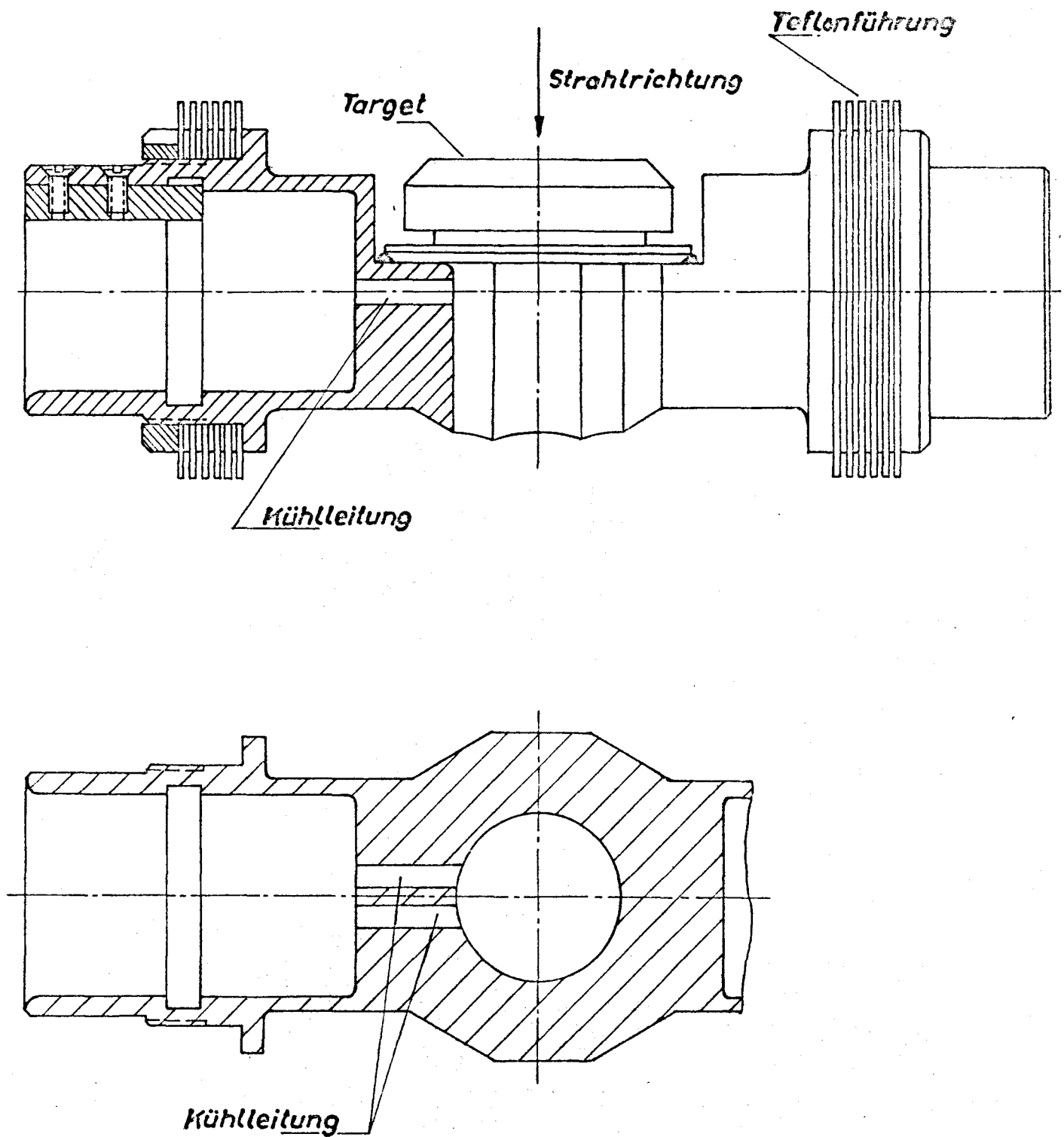


Fig.7 : Läufer mit Target für Rohrpostanlage

Figure 8

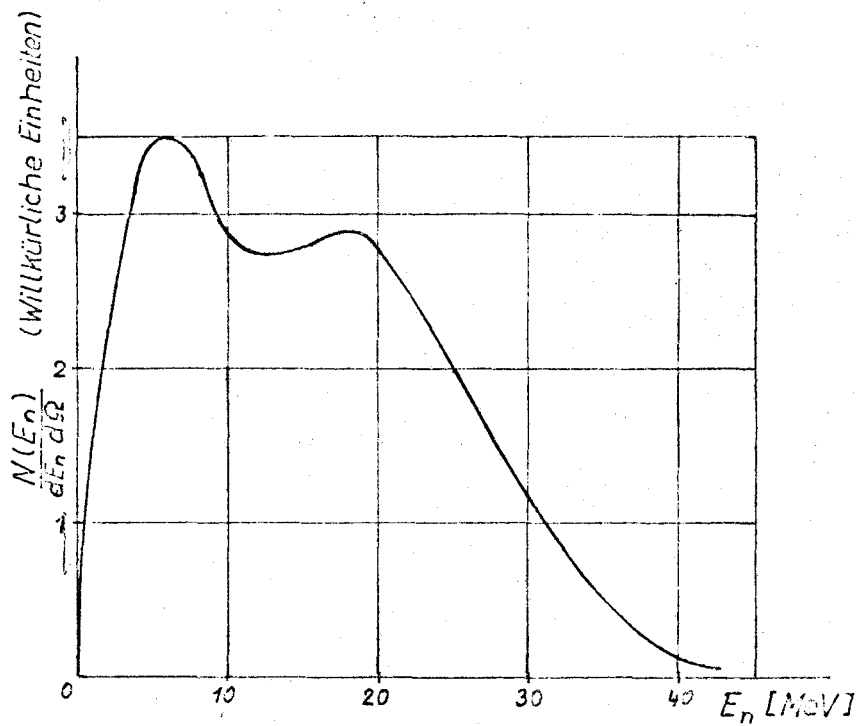


Fig.8 : Spektren der beim Beschuss eines dicken Berilliumtargets mit 50 MeV Deuteronen unter 0° emittierten Neutronen

Monsieur GODAR

Je suis intéressé à la production de neutrons de 800 keV, environ, et il me faut, pour réaliser l'application que j'envisage, un courant de faisceau d'environ 200 μ A. Je me suis adressé à 160 laboratoires de physique, disposant d'un accélérateur qui avait le courant de faisceau demandé et l'énergie suffisante; et j'ai reçu, sur 160 réponses, 3 réponses positives : une permettant une irradiation de fluorure de lithium à 200 μ A, une à 400 et un laboratoire dont l'appareil est encore en construction, mais qui permettra d'avoir un faisceau de 1,2 mA sur cette cible. Quant à la cible, je n'ai trouvé personne qui pouvait la fabriquer, sauf le laboratoire qui a l'accélérateur - qui me répond ceci : d'habitude, ils préparent ces cibles eux-mêmes, et comme les cibles de fluorure de lithium ne peuvent pas évidemment, sur la petite surface du faisceau, supporter une telle intensité, pour résoudre notre problème, nous serons obligés, d'utiliser une cible rotative, avec une couronne de fluorure de lithium.

Monsieur FLEISCHER

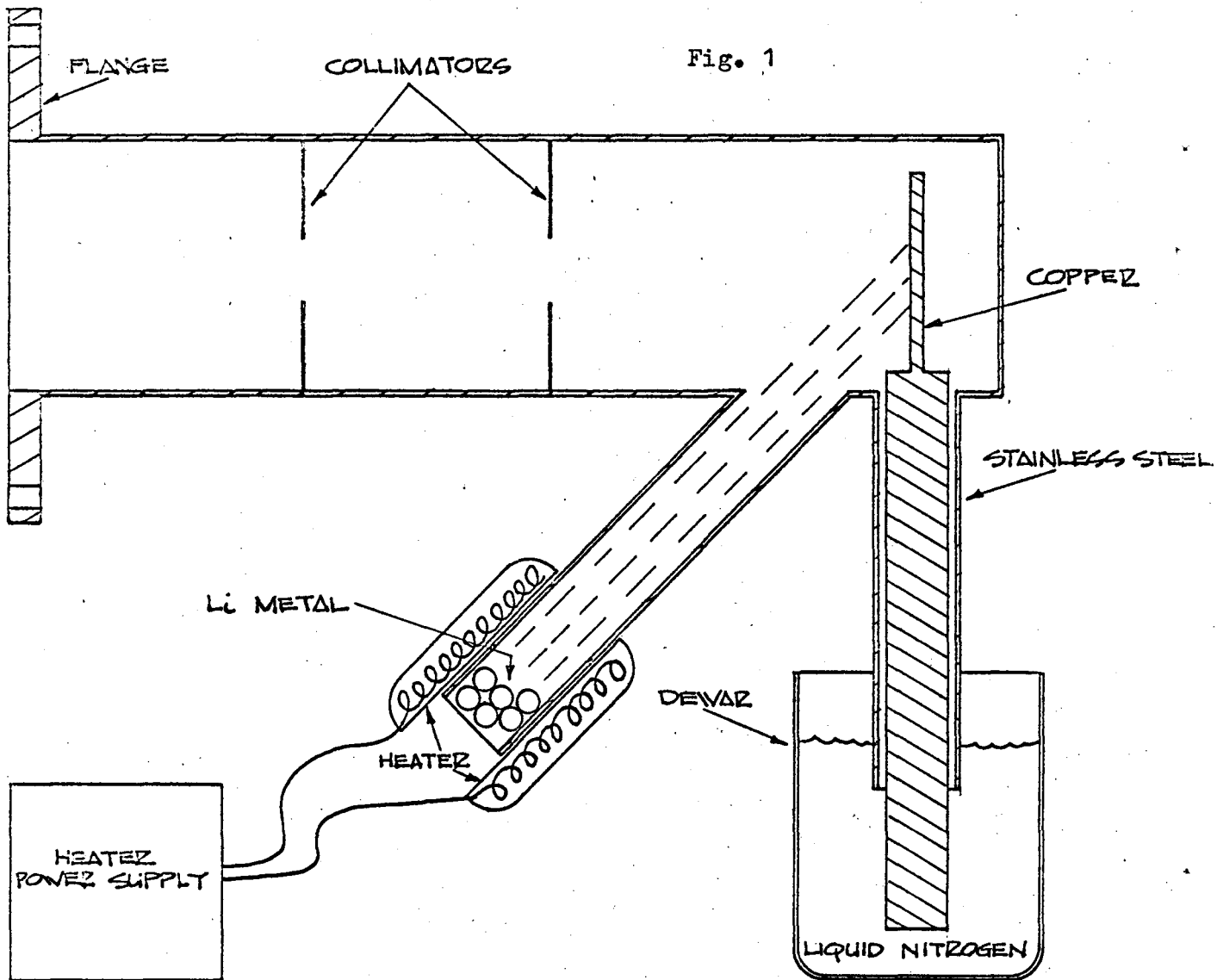
Dr. Frank Williamson at Argonne National Laboratory is right now making an attempt to design a 10 to 15 kilowatts per square centimeter lithium target.

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

Je ne pense pas que nous ayons épuisé le sujet des cibles de beryllium et de lithium.

Monsieur MORGAN

I think I can draw several systems that we have used in the nuclear physics laboratory for years, they are not too easy to work with but they are at least workable systems which we employed for a large number of years. The target assembly is rather messy to use but works fairly well, particularly if you monitor the neutrons. In the vacuum system of the accelerating drift tube is inserted as shown in fig.1 a copper rod with a thin copper plate approximately 5 centimeters in diameter on top of the rod. The copper rod is placed in a liquid nitrogen Dewar. A side tube was constructed which contained lithium metal and this was continuously heated so that the lithium boiled off and condensed on the plate and continuously made a new lithium target. The beam tends to evaporate the lithium off the target and it coats up in the region of the target. If you have a sufficient reservoir of Li you continuously produce a new target. This target we have used for the lithium p,n reaction at currents of 25 μ A producing neutrons in the region of 50 keV to 3 MeV. A second type target which has already been mentioned is one that rotates. We constructed one of these for solid lithium targets but were never able to maintain beam currents on the rotating target of this order. On rotating targets we were able to maintain the order of 10 μ A and at a constant flux over a long period of time. The target in figure 1 is probably the best way to maintain a high neutron flux but it is also the messiest.



UNLESS OTHERWISE SPECIFIED DIMENSIONS ARE										
DECIMAL		FRACTIONAL		ANGULAR						
+	-	+	-	+	-					
MATERIAL						R5				
						R4				
						R3				
						R2				
FINISH						ASSY USED ON				
						R				
DATE	DRAWN BY	DATE	CHK'D BY	DATE	APP'D BY	AT	WAS	DATE	DRAWN BY	APP'D BY
NONE	CPM	10/8/65								
CONCO Nuclear Corporation Subsidiary of Nuclear Chicago Corporation 225 Howard Avenue, Oak Park, Illinois, U.S.A.						REVISIONS				
LITHIUM TARGET										

Monsieur PERKIN

I am quite surprised at your query about a lithium target, it's about the only neutron source that we have no trouble with. We use a circular solid target of lithium fluoride and the deuteron beam hits one side of the target. The target is connected by means of a bellows to the accelerator and the whole thing is rotated off centre. This avoids any contamination of oil from O rings etc. We can run this target indefinitely at 100 μ A. We're interested in neutrons from roughly 10 to 500 keV. We're interested in good energy resolution so we keep our target fairly thin, of the order of fifty to a hundred and fifty microgrammes per cm². This gives us roughly \pm 25 keV uncertainly in our neutron energy. The spot size is only of the order of a few mm². I think with a beam of say 2 MeV that works out to more than a kilowatt per cm². The cooling is simply a blast of compressed air. We had trouble, to start with the backing, because it tended to cristallize after a time and we had small vacuum leaks but we now use a 0,25 mm thick silver backing, and this works very well. We want to test this target to destruction because we are quite interested in increasing our maximum current. We think that we might double or maybe triple the present current.

Monsieur GODAR

Monsieur PERKIN, combien de temps dure votre irradiation ?

Monsieur PERKIN

Several days.

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

Je pense qu'il nous faut maintenant passer aux autres cibles, si nous voulons en terminer avant l'interruption. Il sera, éventuellement, possible de reprendre des discussions sur les cibles de lithium, soit après l'interruption, soit même demain si l'occasion s'en présente. Au programme, nous avons les points V " Cibles de lithium ", et VI à X : Cibles de vanadium, de scandium, de cuivre, d'azote, d'oxygène ".

Nous allons ouvrir la discussion sur tous ces points simultanément. Auparavant, je dois dire qu'une communication de Messieurs GIBBONS et MACKLIN ne sera pas présentée en séance, mais figurera aux proceedings, au sujet des " Sections efficaces de la réaction Vanadium (p,n)".

$^{51}\text{V}(\text{p},\text{n})^{51}\text{Cr}$ Cross Section from Threshold to 2.25 MeV ^{*}

J.H.Gibbons and R.L.Macklin
Oak Ridge National Laboratory
Oak Ridge, Tennessee

Introduction: The use of the $^{51}\text{V}(\text{p},\text{n})$ reaction as a neutron source in the 10-700 keV energy range has recently been reviewed.¹ Earlier measurements of forward yield and angular distributions² have shown a very complicated resonance structure not fully resolved at 1 keV resolution. However, the variation of neutron energy with laboratory angle is sufficient to provide a continuous neutron flux, reasonably uniform over a band of energies, when the 4 π yield is used (see ref.3 for example). While the neutron

^{*} Research sponsored by the U.S. Atomic Energy Commission under contract with the Union Carbide Corporation.

yield can be found for a particular target and bombardment by measuring the ^{51}Cr radioactivity produced, this may not always be as convenient as the use of a proton current integrator together with the target thickness and the (p,n) cross section.

Experimental: The equipment used was substantially the same as that described in an earlier report.⁴ We used the proton beam from the ORNL 5.5 Van de Graaff accelerator, vacuum-evaporated natural vanadium targets on Pt backings, and the graphite sphere 4π neutron detector.⁵ The particular target used in this measurement (Fig.1) was $(226 \pm 7) \mu\text{g}/\text{cm}^2$ by weight. Crystal growth gives a small variation of thickness and our estimate of this effect from experience with thinner targets is indicated in Fig.1. The proton beam was collimated and passed electron scraper and bias slits before entering the ~ 1 meter long target tube. The relative yield at several energies was checked during the course of the measurement and was repeatable to about 3%.

Results: The cross section obtained is given in Fig.1. It is clear from an examination of our earlier work² that each peak observed is due to several resonances. For example, the peak near 1.63 MeV is due to about 15 resonances. Thus the cross section shape will vary with target thickness. The results of Harris, et al., are also plotted in Fig.1. The agreement between these two measurements varies from good (1.65 to 1.7 MeV and 1.9 to 2.1 MeV) to relatively poor elsewhere. The disagreement for $E_p > 2.15$ MeV may be partially due to the different target thickness used but there is no apparent explanation for the other areas of disagreement.

In contrast to this, our data are in very good agreement over the entire energy interval measured with the results of Johnson, Galonsky and Ulrich,⁶ who used a 4 π neutron detector whose efficiency vs energy was calibrated with a manganese bath. We estimate our errors (S.D.) to be approximately as follows: target thickness (3%), proton beam current (1%), detector efficiency ($\leq 3\%$), accelerator energy stability (~ 1 keV), counting statistics ($< 1\%$). Thus the relative cross section should be accurate to about ($\pm 2\%$) and the absolute cross section to about ($\pm 5\%$).

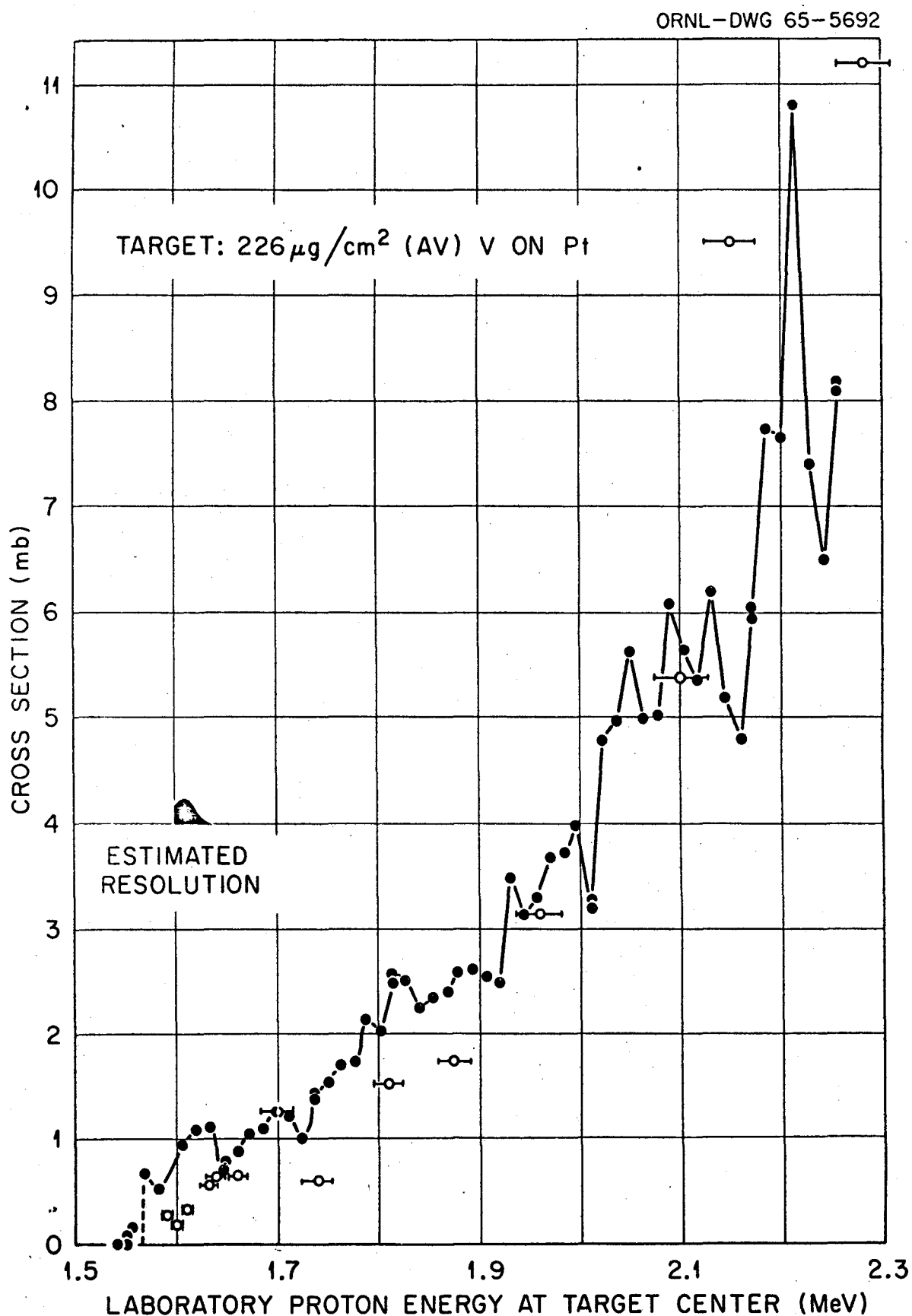
CONCLUSION: The total cross section is only about 1 mb for the production of about 100 keV neutrons, compared to several hundred mb for T(p,n) and $^7\text{Li}(p,n)$ reactions; but the target atomic weight is such that the full 4 π solid angle can be used without introducing large energy spreads. While the effective cross section is somewhat dependent upon target thickness the results, given proton current and target thickness, should allow a 4 π neutron yield determination for $E_p \lesssim 2.2$ Mev accurate to less than 10%.

ACKNOWLEDGEMENTS: The authors greatly appreciate conversations with H.Grench and C.H. Johnson.

Figure Caption:

Fig.1. The $^{51}\text{V}(p,n)^{51}\text{Cr}$ total cross section. The cross section value for a given proton energy is dependent upon target thickness. The solid line simply connects data points. The open circles are due to Harris, et al.¹ The data of Johnson, et al.⁶ are virtually identical to the results herein reported.

Figure 1



$V^{51}(p,n)Cr^{51}$ Average Cross Section as a
Function of Proton Energy.

REFERENCES:

1. K.K.HARRIS, H.A. GRECH, R.G. JOHNSON and F.J. VAUGHN,
Nucl. Instr. and Methods, 33, 257 (1965)
2. J.H. GIBBONS, R.L. MACKLIN, and H.W. SCHMITT, Phys. Rev.
100; 167 (1955)
3. K.K. HARRIS, H.A. GRECH, R.G. JOHNSON, F.J. VAUGHN,
J.H. FERZIGER and R. SHER, submitted for publication
in Nucl. Phys.
4. J.H. GIBBONS and R.L. MACKLIN, Phys.Rev. 114, 571 (L959)
5. R.L. MACKLIN, Nucl. Phys. 1, 335 (1957)
6. C.H. JOHNSON, A.GALONSKY, and J.P. ULRICH, Phys. Rev.
109, 1243 (1958)

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

Y a-t-il des orateurs qui sont désireux de parler
concernant les points VI à X ?

Puisqu'aucun orateur ne se manifeste, je voudrais personnellement
demander à Monsieur MORGAN à quel type de cibles sont relatives
les discussions qu'il voulait voir s'ouvrir ? Vous m'avez fait
passer un papier, tout à l'heure : si c'est relatif aux cibles
d'uranium, nous attendrons encore un peu.

Monsieur MORGAN

I think in the majority we have been concerned with
solid tritiated targets however some of the group is interested
in other types of targets. We can get to one of them now and
that's the gas targets. Particularly nitrogen and oxygen tar-
gets are currently of interest. The accelerator users of gas
targets for making the d,dn reaction where you actually have

the deuterium in gas form within the target, and the t,pn, the t,dn using tritium gas. I would like to have a discussion of gas targets for high energy machines in which you can put a lot of current through a gas cell. In particular we are in the process of modifying one of our accelerators. In the ion source we hope to have an initial intensity of 2 mA. This machine is pulsed then bunched such that we hope to have a beam with 20 mA of peak current and a 10^{-9} seconds pulse width. If you have a repetition rate of 1 megacycle, you have an average current of about 20 μ A at 3 MeV we have something in the order of 60 watts which we are trying to dissipate in a very thin metal foil and target assembly in which gas is contained. I think there are several techniques which have been used in the past, a single-foil technique, in which the deuterium or tritium gas is circulated and cooled and allowed to blow directly on the foil in order to keep the foil cool. In past years the foil was normally nickel of the order of 0.005 inch in thickness. In recent years we have changed, to the molybdenum foils as recommended by the Los Alamos Group and have increased our beam current from one μ A which could be used say during a complete working day up to the order of 5 μ A. I think one thing that must be pointed out. Normally in these systems the collimation is a very high degree and the current density is extremely high. I think the group that's interested in high energy and high currents would be interested in techniques in which the average current might be 50 μ A. Additional techniques which have been used are a double gas foil window, in which the cooling gas was hydrogen and is then blown between the two foils in order to cool the entrance windows. Any one who might have comments on this range of beam currents in the region of 1 to 10 MeV will be appreciated.

Monsieur MUNZER

If I understood you right you are using a window through which you shoot into the gas cell. Then I think your value of 60 watts is too high because it is the total beam power, what you have to quote is $20 \mu\text{A}$ times the energy loss in the window, not this whole ion energy.

Monsieur MORGAN

I will agree in the comment that for the foil the dE/dx in the foil is the order of a 100 kilo volts times the $20 \mu\text{A}$. However you still have the problem of dissipating the total 60 watts in the gas system. The problem of the gas heating up and expanding, the total target system getting hot, and although the average current is only $20 \mu\text{A}$ the current density may be $200 \mu\text{A}/\text{cm}^2$.

Monsieur PETER

Ich möchte ganz ausserordentlich bezweifeln, dass es gelingt, in einer Gasstrecke von schätzungsweise 5 cm einen Strahl der genannten Qualitäten zu absorbieren. Absorbiert werden bestenfalls einige Prozent davon. Solche Gastargets sind in dieser Form seit langem bekannt und werden eigentlich an vielen Instituten verwendet. Aber der Gasdruck, unter dem diese Gase maximal stehen können, beläuft sich auf Drucke von 0,2 - etwa 0,8 Atmosphären in der Praxis. Man kann sich sehr leicht ausrechnen, wenn man auf diese Strecke wirklich den ganzen Strahl zur Absorption bringen wollte, müsste man Gasdrucke also von vielen Atmosphären verwenden.

Monsieur MORGAN

Currently in our laboratory we use two to three atmospheres gas pressure behind an 0.005 inch molybdenum foil with 5 μ A through the foil. We would certainly like to maintain this pressure in the gas cell but increase the current to twenty to fifty μ A.

Monsieur PERKIN

There is yet another type of gas target that Mr. MORGAN did not mention. In this method you go back to a single foil but you support it with a thick grid with about 70 or 80% transmission to take the heat away. This idea was developed by somebody in America (I'm afraid I haven't got a reference for it) who quoted a maximum current of something like 40 or 50 μ A. We've used this target at Aldermaston and we can certainly run for days at 10 μ A, but we've never yet run it to destruction.

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

S'il n'y a pas d'autres interventions... ?

Monsieur SMITH

I missed the pressure you stated but we have tested molybdenum foils of 9.6 mg per cm² thickness to breaking pressures of 500 pounds per square inch over a window diameter of 2/10 inch. We use these foils at 10 μ A and 200 pounds per square inch of deuterium quite regulary.

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

S'il n'y a pas d'autres interventions sur les cibles dont nous venons de parler, je propose que nous consacrons le quart d'heure qui nous reste aux cibles d'uranium pour réactions $\gamma - n$.

Un orateur désire t'il prendre la parole au sujet de ces cibles d'uranium ?

Monsieur ALLARD

Nous avons, à Geel, au B.C.M.N., en cours de construction, un accélérateur linéaire, qui est destiné à produire des neutrons sur une cible en uranium. J'ajoute tout de suite que ces neutrons ne sont pas destinés à l'activation de matériaux. Il s'agit de neutrons pulsés, destinés à effectuer des mesures de section efficace par temps de vol. Il n'en est pas moins vrai que ces cibles posent des problèmes techniques et technologiques, qui ont une certaine parenté avec ceux dont on a parlé jusqu'à présent. La principale difficulté que nous allons rencontrer réside dans la puissance moyenne qui doit être dissipée dans ces cibles, où l'on ralentit un faisceau d'électrons par freinage dans l'uranium. La puissance moyenne de ce faisceau d'électrons ralentis dans l'uranium, est prévue au départ de 4 kW moyens, et peut aller, au cours d'améliorations progressives du fonctionnement de la machine, jusqu'à 10 - 15 kW moyens de faisceau. Aussi, je demande si parmi les participants, certains d'entre eux sont au courant de problèmes analogues résolus, notamment, aux U.S.A., - je pense à San Diego, je pense au laboratoire du R.P.I., je pense aussi à d'autres laboratoires, notamment à Oak Ridge

et je pense aussi, en Angleterre, au laboratoire d'Harwell.- J'ai décrit, dans un court article, qui a été adjoint au premier compte-rendu des conférences sur les cibles pour accélérateurs (Liège), la cible que nous projetons d'utiliser dans quelques mois. J'aurais espéré vous parler des premiers résultats à cette conférence, malheureusement l'avancement de la mise au point de notre machine n'a pas encore permis d'essayer cette cible. Donc, la question posée est de savoir si des participants sont au courant de problèmes semblables ?

Monsieur STEELE

I just basically want to apologize. He mentioned San Diego and I really should be able to quote those numbers. The work is, in fact, in progress under the direction of Dr. David Herring and Dr. Van Reet. However, my transfer system to the Linac is only now under construction and one doesn't get involved in the absolute numbers until one is ready to irradiate a sample. I can't quote the numbers to you. They have run a variety of uranium targets to destruction, and I'm sure either gentlemen or if you will contact me I will be glad to look up this information, when I go back.

Monsieur CHRISTALLER

Ich möchte, weil ich glaube, dass es interessant ist, über einen Misserfolg berichten, den wir gehabt haben. Wir haben uns errechnet, dass man mit einem Zyclotron und einem Urantarget eine ausserordentlich hohe Neutronenquellstärke erreichen kann. Wir sollten mit unserer Maschine in

Karlsruhe eine Quellstärke erhalten von 10^{14} bis 10^{15} Neutronen pro Sekunde mit einem Uraniumtarget. Wir haben erste Versuche gemacht, die leider erst fehlgeschlagen sind. Die grosse Schwierigkeit dabei ist, dass infolge der Spaltung, es sind also im wesentlichen Spaltungsneutronen, die entstehen, infolge der Spaltung auch erhebliche Mengen von Spaltprodukten, d.h. vor allen Dingen von Spaltgasen entstehen. Wir haben versucht, das Urantarget, z.B. mit dickem aufgedampftem Titan dicht zu umschliessen, sodass die Spaltgase nicht heraustreten konnten. Diese ersten Versuche, die vor ungefähr einem 3/4 Jahr gemacht worden sind, sind leider fehlgeschlagen, weil es überall kleine Bläschen gegeben hat in der aufgedampften Titanschicht, sodass wir diese Versuche zunächst abgebrochen haben.

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

Je pense que le gainage de la cible d'uranium est probablement nécessaire pour une autre raison : j'ai une expérience minime d'uranium utilisé comme source de rayonnement de freinage. Nous avons remarqué que le changement de phase de l'uranium, lorsqu'il monte en température, conduit à l'apparition d'une poudre à la surface, et naturellement il serait extrêmement gênant que cette pulvérisation se produise dans l'accélérateur. On risquerait des contaminations. C'est une autre difficulté que présentent les cibles d'uranium.

Monsieur ALLARD

La transformation que vous signalez peut être évitée par l'addition de molybdène dans l'uranium, paraît-il.

Quelques pourcents (20°/.) de molybdène dans l'uranium peuvent supprimer la transformation $\gamma - \beta$. Si l'on ajoute 1 à 20°/ de molybdène, le seuil en température de cette transformation (qui a lieu autour de 650°) est reporté, paraît-il vers 1500-2000°. A partir de 20°/ de molybdène il n'y aurait plus de transformation du tout et la phase γ serait stable.

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

Je vous remercie de cette précision. Je n'ai pas d'informations à ce sujet.

Monsieur STIEVENART

Je dois vous dire que je ne suis pas du tout un spécialiste des accélérateurs mais que je m'intéresse essentiellement aux réacteurs. Et je tiens à confirmer cette information de Monsieur ALLARD : elle est essentielle en ce qui concerne les réacteurs à neutrons rapides. Je crois que, jusqu'à présent, il n'existe pas de réacteurs à neutrons rapides qui utilisent un taux de molybdène plus grand que 10 - 15°/ de molybdène. Et je crois que c'est un des seuls moyens que l'on utilise pour augmenter le burn-up, c'est-à-dire pour combattre ces efforts de produits de fission.

Monsieur MILLER

There is one practical difficulty with the use of the 10 or 12°/ molybdenum alloy, and that is that 10 or 12°/ by weight is actually 22 or 25 atom percent. Thus the output decreases rapidly as the molybdenum content is raised. The molybdenum 10°/ by weight 25°/ atom pro atom and this decreases the bremsstrahlung output considerably.

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

Je ne sais pas si quelqu'un a l'expérience de ces alliages d'uranium et d'autres matériaux pour la production de bremsstrahlung. Personnellement, je n'ai aucune expérience sur ce point.

Interruption

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

Nous ouvrons maintenant la discussion pour une heure sur les problèmes qui ont été, dans l'ensemble, discutés et, également, sur ceux qui ont été omis. Je les cite très rapidement : il s'agit des problèmes de contamination, 12 C, de consommation des gaz des sources 12 A8, d'influence et de nature du support des cibles tritiées, des problèmes de manipulation et de conservation des cibles, et enfin des problèmes de production des neutrons thermiques, à partir des neutrons d'énergie variée qui sont produits dans les réactions qui ont été évoquées au 12 G. Naturellement, tous les autres points qui ont déjà été discutés abondamment peuvent à nouveau faire l'objet de discussions. Y a-t-il un orateur qui désire prendre la parole pour revenir sur un de ces nombreux points ?

Monsieur LAVERLOCHERE

Si j'ai bien compris la suggestion du Dr. MORGAN ce matin, il s'agissait de voir s'il serait possible de standardiser la fabrication des cibles. Est-ce que j'ai

bien compris ? Je souhaiterais que cette question soit mise en discussion, en demandant surtout ce qu'en pensent les fabricants.

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

Il me paraît nécessaire de préciser ce que l'on entend par standardisation. Il peut s'agir en particulier du diamètre extérieur des cibles qui actuellement ne sont standards que pour la dimension de un pouce environ et, il peut s'agir également d'une standardisation d'un certain nombre de chiffres concernant la charge en tritium de la cible. Nous connaissons des cibles de un curie par pouce². 4 curies par pouce². Il pourrait être utile de discuter sur l'opportunité de construire et de fabriquer des cibles d'épaisseur standard, de charge standard. Nous nous adressons spécialement aux fabricants de cibles, nous espérons qu'ils ont un avis à émettre sur ce point.

Monsieur MUNZER

If I may say a few words on the tritium concentration per square inch, I think the concentration of 1 curie per inch.² has historical reasons. We've chosen a concentration for one of our standard, concentrations of 2 curies per inch² because for this concentration the titanium thickness roughly corresponds to the range of 150 to 200 keV deuterons, which seems to be economic. Higher concentration in curies per inch² will just give a longer target life and it depends on the experiments which are planned and the money which is available for the experimenter which concentration he will take. I should like to say further a few words to the uniformity of tritium concentration over the area of the target. Mr. MORGAN has shown a slide which gave a very

strong variation of tritium concentration over the area. We have measured our targets quite systematically and it is quite possible to keep the variation in tritium concentration smaller than, let's say, 5% over a diameter of, for instance, 1 or 1-1/8 of an inch. This depends on the distance which is used in the evaporation process between the crucible and the target backing and it is further helped if the callote which holds the target discs is rotated during the evaporation process, but this, I think, is rather a standard procedure used in evaporation. Further as I have just the microphone I would like to make a comment and put a question to the paper of Mr. MORGAN. I was very impressed by this experiments and I think it would be very difficult to improve on the experimental arrangement. The more I am surprised that they found the same half-life for the target with aluminium coating and the target without aluminium coating, because this is in serious disagreement with quite a number of experimental results. I refer not only to our own results but also to quite a number of results arrived at independently in other laboratories, mostly in Germany, where our aluminium coated targets are used to quite a large extent. If I understood correctly, the experiments were extended over a period of one year and I would like to ask now whether our two targets were tested on the same day and perhaps using the target changer described in one slide, because only this would ensure constant experimental conditions and only such a procedure will give reliable results.

Monsieur MORGAN

I certainly agree with your comment that only that procedure will give standard results and all the curves on slides 3,4,5,6 and 7 were run on the same day in the multiple target holder. The only thing I can say about the lower yield from the Al-coated target is the data speaks for itself.

Monsieur WIESNER

Über das "sputtering" von Tritiumtargets ist im Verlauf dieser Tagung schon sehr häufig gesprochen worden. Dabei handelt es sich um einen mechanischen Vorgang, der sich im submikroskopischen Masstab abspielt.

Dagegen wurde über die chemischen Wirkungen der Bestrahlung von Tritiumtargets mit Deuteronen bislang nichts ausgesagt. Es würde mich interessieren, was man über die chemische Strahlenbeständigkeit der verschiedenen als Target verwendeten Hydride weiss, zumal die chemischen Wirkungen der Bestrahlung erhebliche Tritiumverluste verursachen können. Durch ihre Berücksichtigung könnte ausserdem vielleicht geklärt werden, wo eigentlich das verlorengehende Tritium bleibt, denn darüber besteht nach den bisherigen Diskussionsbeiträgen noch keine Klarheit.

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

Je ne sais pas si quelqu'un a une réponse précise à donner à cette question. Mr. MORGAN

Monsieur MORGAN

During the paper this morning I briefly referred to an experiment in which we look for the tritium concentration in the cathode "plate" of the ion pump. As you will recall from the data there was very little tritium found in the area of the pump where most of the pumping action occurred. We perform experiments to look for tritium in the accelerating tube and the drift tube and particularly in the region near the target. As indicated earlier most of the activity observed using a xénon proportional counter most of the radiation exhibited a 4.85 KeV titanium K alpha X ray which would indicate that the material was titanium and left the target with the tritium and deposited on the drift tube walls.

Monsieur LOMER

I would like to make one or two comments on the suggestions that the target systems should be standardized.

Those who have played around with the production of targets will know all too well that it is not easy to control the thickness of the evaporated layers, the exact quantities of tritium which are absorbed in these layers and personally I think that if you try and lay down such specific conditions then the expense of this target will go up, out of proportion to the advantages that you have obtained. The other point I wanted to make is briefly, to run over the advantages or rather the problem associated with targets from one particular point of view and that is from the point of view of industrial application at a level, let us say, of 10^{11} neutrons per second- and I deliberately choose this level because it exaggerates the problem which exist to some extent at 10^{10} . Supposing you have a 5-square-centimeter target, and from this you wish to produce 10^{11} neutrons per second and since it is an industrial application let us assume that a DT reaction will be used since this permits the use of a relatively cheap power supply. Well, the first target problems which are encountered are those we have heard a lot about in the past two days, namely dilution of tritium with deuterium and I don't think really it's been sufficiently recognized that this is almost an intrinsic problem of all the materials which have been discussed, for example rare earth and titanium are going to be very similar from this point

of view. Similarly the new non-metallic targets which have been discussed are almost certainly going to have the same sort of problem. It is quite intrinsic that if you introduce deuterium into a tritium-loaded target and exchange between deuterium and tritium can take place, then the half life of that target is going to be limited and at 10^{11} neutrons per second its going to be very short of the order of minutes. So the next solution is to have a rotating target and again its fairly clear that this will give an increase in life in proportion to the size of the rotating target. The problem that hasn't really been recognized today is how do you handle such a target, remembering that in the UK at any rate the regulations for handling radioactive isotopes would permit the replacement of rotating targets in, shall we say, a steel works, where there are no facilities for handling this sort of radioactive material. One should not underestimate the hazards associated with handling tritium-loaded targets although in many cases you can rub them and get no tritium off, no target manufacturer would guarantee that all his targets from this point of view over a long period. So we come to what I see as the only solution to this problem and that is the use of a DT mixture. This overcomes the dilution problem of course and it leaves the two outstanding problems as I see them now, of sputtering and of target cooling, and perhaps we might conclude with a third one of damage effect induced by the prolonged ion bombardment. These problems are still common to any of the target that we have been considering and it seems to me that more emphasis in the future should go on these aspects of the work rather than worrying about the half life of tritium targets bombarded with deuterons. Finally from the work of SERL it appears that we should be able to get 10^{11} neutrons per second for one hundred hours in the near future

and I thought I would end up the point that this does bring activation analysis at a level of 10^{11} neutrons per second to quite a cheap level. For example, for oxygen determinations it works out at about three pennies per sample.

Monsieur WIESNER

Die verschiedenen von Mr. MORGAN mitgeteilten und soeben diskutierten Versuchsergebnisse stehen eigentlich im Widerspruch zueinander. Durch einen sehr dünnen Aluminiumüberzug des Targets können sich die Tritiumverluste sicherlich nicht wesentlich verändern, wenn sie durch die Zersetzung des Titanhydrids als Folge der Bestrahlung hervorgerufen werden, denn freigesetztes Tritium diffundiert durch dünne Aluminiumfolien hindurch.

Ist aber in erster Linie das mechanische Herausschlagen vom Titanhydrid aus der Targetoberfläche für die eintretenden Verluste massgebend, dann müsste das Abdecken des Targets mit einer Aluminiumfolie Abhilfe schaffen. Wahrscheinlich werden jedoch beide Wirkungen der Strahlung, d.h., sowohl die Zersetzung als auch das Herausschlagen von Titanhydrid gleichzeitig auftreten, sodass der Aluminiumüberzug die Tritiumverluste des Targets zwar nicht vollkommen verhindert, aber doch wesentlich reduziert.

Monsieur REIFENSCHWEILER

Ich möchte darauf hinweisen, dass die gemessenen Kurven für die Abnahme der Neutronenausbeute, die ja stets von Beginn ab direkt abnimmt, der Annahme widerspricht, dass der Tritiumverlust durch Herausschlagen von Titanhydrid

aus der Oberfläche des Targets verursacht wird. In diesem Falle müsste nämlich bei einem genügend dicken Target zu Beginn keine Abnahme der Neutronenausbeute eintreten, d.h., bei einem Target, das etwas dicker als die Reichweite der Deuteronen ist. Eine derartige Abnahme dürfte erst dann eintreten, nachdem soviel Titaniumtritid abgetragen ist, dass die Dicke der Schicht wesentlich kleiner wird, als die Reichweite der Deuteronen. Wir können deshalb annehmen, dass die Abnahme der Neutronenausbeute wirklich durch den Verlust des Tritiums selbst aus dem Target verursacht wird. Es ist jedoch zu erwarten, dass grosse Mengen Tritium von dem Titan, das durch Zerstäubung auf den umgebenen Oberflächen niedergeschlagen wird, gebunden werden. (Durch Zerstäuben oder Verdampfen frisch gebildete Titanoberflächen nehmen nämlich alle Wasserstoffisotope, also auch Tritium, begierig auf.) Dies ist das Tritium, das Herr MORGAN bei seinen Messungen gefunden hat.

Monsieur GRAY

I should like to return to the points which Mr. LOMER raised just now. As a user of small neutron generating machines in industrial circumstances I should like to endorse his comment that the real problems to be solved in target lifetime are those of sputtering, cooling and ion bombardment damage. I would however like to take issue with him of his alarm at the prospect of handling rotating targets in industrial conditions. I am not using rotating targets but I have quite successfully obtained the Health Authorities' agreement for operation in a steel works of equipment which involved steel works staff who are not trained in health physics handling units of 100 curies of tritium. This with proper engineering can be done quite safely and I don't visualize that, if

rotating targets were adequately designed, so that the tritium bearing foil was handled at the manufacturer and supplied in a suitable interchangeable cassette to the user, that there would be health physics risks or difficulties raised by the authorities.

Monsieur FABIAN

Ich möchte zu den Ausführungen von Herrn WIESNER und Herrn REIFENSCHWEILER folgendes Experiment beschreiben. Um feststellen zu können, ob der Tritiumverlust " Entgasen " oder " Zerstäuben " ist, wurde folgendes Experiment durchgeführt. Ein Target wurde zweimal 5 Minuten lang bestrahlt und dabei die Neutronenausbeute verfolgt. Nach den ersten 5 Minuten wurde das Target geschwenkt und 5 Minuten ein zweiter, zunächst unversehrter Targetfleck beschossen. Die zwei Ausbeutekurven waren vollkommen gleich. Wenn man den Tritiumverlust eines Targets misst, das an einer Stelle 10 Minuten lang beschossen worden ist, und vergleicht mit dem Target, das an 2 Stellen je 5 Minuten beschossen wurde, sieht man, dass der Tritiumverlust vom Target mit den 2 Brennflecken ca. der doppelte ist. Der Tritiumverlust betrug beim Target mit 1 Brennfleck ungefähr 15%/. Beim Target mit den 2 Brennflecken betrug der Tritiumverlust ca. das Doppelte. Dieses Experiment glaube ich, beweist, dass am Anfang der Bestrahlung der Tritiumverlust nicht durch Sputtering, sondern durch Entgasen bewirkt wird.

Monsieur PERKIN

I would like talk about the health physics aspect of the tritium loss. I think that when targets are used industrially and the tritium content of these targets gets up to the 1000 curies level we shall have to worry quite a bit about hand tolerances. A dose of some 10 r per hour will be experienced by anybody who puts a hand near one of these big targets. The other hazard which has not been talked about much but which we find at Aldermaston is easily the most serious hazard is the question of oil. In any system, in any accelerating system that involves oil pumps, there will be an accumulation of tritium in the oil. A person can inhale maybe a thousand air tolerances of tritium for a short period and nothing will appear in his urine, but if he comes in contact with oil which has been in the accelerator system this will soon show in his urine. Also the oil penetrates rubber gloves very easily indeed, and we find that we have to change gloves when working at ten minute intervals to keep urine tolerances to a reasonable level. Also we find that if any modification is made to the accelerator system which involves heating, the tritium tolerances in the locality increase alarmingly so I think that it must be accepted that once tritium is introduced into an accelerating system no changes must be made to that system other than installing completely new parts.

Monsieur MORGAN

One question I would like to present to the colleagues is in the analysis of the cathodes of the ion pump we found tritium levels to the order of one millicurie

per cm². When one considers that there are 1.200 cm² of titanium cathode, this only permits about 3.2 curies of tritium in the pump, since the machine was operated for a hundred and fifty hours with tritium targets that leaves seventy five curies of tritium unaccounted. I would be very appreciative if someone could enlighten me as to where the rest of the tritium went ?

Monsieur MUNZER

I should like to ask whether you have measured the amount of tritium remaining in the target after the experiments. Because usually, if the beam spot is smaller than the diameter of the target, approximately half of the tritium remains in the target and is thrown away together with it.

Monsieur HOLLISTER

On this subject it seems fairly well established that the tritium is quite mobile in titanium. There is a certain amount of evidence to this fact in the observation on target life in which, if the target is allowed to sit overnight the output is quite often found to be higher than it had been at the last previous operation. I would like to suggest that the amount of tritium contained in the thin layer of the pump cathodes probed by the ion beam in using these cathodes as a target, was just a small fraction of the tritium actually contained in the cathodes and that

there might have been a much larger amount deeper into the titanium cathodes.

Monsieur MORGAN

If my understanding of the pumping action is correct, the tritium or hydrogen in the ion type pump is absorbed by a drive-in phenomenon whereas the nitrogen and oxygen is pumped by a gettering phenomenon. Assuming that you have a 3 kV potential across the pump it stands to reason that in general most of the tritium should be on the surface unless the pump has been allowed to attain a temperature which would allow it to go into the absorption stage.

Monsieur BROERSE

From our experiments it may be concluded that the tritium has been discharged neither in the pump oil nor in the released gas. In our vacuum system an oil diffusion pump and a rotary pump were used. The oil filling of these pumps was employed over a period of time in which several targets were used. With a liquid scintillation spectrometer a maximum tritium activity of $0.3 \mu\text{C}/\text{cm}^3$ was found in the oil of the pumps. As far as the tritium activity of the released gas is concerned, we found a maximum activity of $20 \cdot 10^{-6} \mu\text{C}/\text{cm}^3$ in the gas during operation at full current.

Monsieur WIESNER

Für die von Herrn REIFENSCHWEILER vorgetragene Hypothese, dass aus dem Target herausgeschlagenes Titan mit dem hinausdiffundierten Tritium reagiert, spricht die

Tatsache, dass in der Drifftube mit der Abgabe erheblicher Strahlungsenergien durch Streustrahlen und mit dem Vorhandensein von Ionen gerechnet werden muss. Andererseits besteht jedoch die Möglichkeit, dass im Brennfleck des Targets freigesetztes Tritium an andere Stellen innerhalb des Targets wandert, deren spezifische Aktivität dadurch natürlich zunehmen würde. Das bedeutet, dass die Neutronenausbeute abnimmt, ohne dass Tritium aus dem Target verschwindet.

Kann Mr. MORGAN angeben, um wieviel % sich der Tritiumgehalt des gesamten Targets im Laufe der Benutzung verringert hat und welcher Bruchteil dieses Tritiums später in der Drifftube gefunden wurde ?

Monsieur MORGAN

At the present time since I don't have the numbers in front of me, I don't believe I would like to quote them but I will be glad to send them to you. I would like to make an additional comment on the matter of sputtering. The use of the helium 3 (dp) reaction for making high energy protons of about 17 MeV for biological irradiations required the acceleration of helium 3 at 1 mA on a titanium deuteride target. This target had a half life of seven minutes.

Monsieur MILLER

In connection with this last thought of looking for the eventual fate of the sputtered tritium I have come across the same problem in connection with the preparation of targets and I found that the only practical way to look for the location of the displaced tritium was to look for the "bremsstrahlung" produced by the absorbed tritium sometimes far from the scene of action where the targets were tritiated. By exploring the outside of the system looking

for the low energy bremsstrahlung from the tritium one can find locations that are not obvious to the eye, which are possibly due to a small amount of oil on a glass surface far removed from the point of action of the impregnation.

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

Je remercie ici tous ceux qui n'ont pas ménagé leur peine en prenant la parole parfois longuement et à de nombreuses reprises. C'est à ceux que l'on doit que ces formules un peu risquées de discussions ouvertes ne soient pas un échec. Nous avons vu apparaître au cours de ces deux journées, des idées qui étaient assez nouvelles par rapport au niveau des discussions de la conférence de Liège. Je pense que les premiers résultats concernant des cibles plastiques ainsi qu'une certaine masse de résultats concernant les cibles de terres rares sont des éléments neufs qui justifient a posteriori la tenue de cette conférence, et qui en même temps ont ouvert la voie à d'autres recherches. Je ne pense pas que les cibles traditionnelles puissent progresser beaucoup maintenant, ainsi que je l'ai dit hier. Toutefois, à la lumière de certains exposés comme celui de M. BESSON, je pense que l'on pourrait tenter d'améliorer la tenue de ces hydrogènes par l'emploi de scandium (où même d'alliage, plus généralement) ce matériau supportant mieux le bombardement du point de vue de la dislocation ou du "sputtering". Il est tout de même certain que les réactions DD et DT, du fait du coût moindre des machines qui les utilisent, ont encore pour de nombreuses années une place assurée dans tous les laboratoires. Les problèmes de contamination qui ont surtout été évoqués à l'occasion des applications

ne peuvent bien être maîtrisés que dans les sources scellées. D'un autre côté, ces sources, en voie de développement n'ont peut-être pas encore tout à fait, en continu, les performances souhaitées par les utilisateurs. C'est pourquoi l'intérêt ne doit pas se limiter à ces cibles tritiées: comme l'a dit M. STEELE, ce qui importe c'est d'avoir les neutrons et on ne doit pas s'accrocher à priori à telle ou telle solution, même si les considérations économiques primordiales nous font refuser les machines très coûteuses. Je pense que maintenant toutes ces machines peuvent se développer dans des directions que nous n'avons qu'entre vues, c'est-à-dire vers des machines peut-être complètement fermées, à fort courant à une énergie pas très élevée.

La plupart d'entre vous seront encore là demain, nous n'allons donc pas prononcer un discours d'adieu mais, ce que nous allons faire maintenant, c'est penser à une prochaine conférence, sur les mêmes sujets, dont Monsieur GODAR m'a parlé. Je crois que nous avons le temps d'ouvrir une discussion sur l'opportunité de refaire des conférences sur le même sujet, sur le temps qu'il faut laisser écouler entre les conférences et, également, sur les modifications à apporter à la préparation de ces conférences; il faut aussi savoir si cette formule de discussion ouverte est applicable à des assemblées qui, j'en suis sûr, seront de plus en plus nombreuses. Sur tous ces sujets, je vais laisser à Monsieur GODAR le soin d'ouvrir la discussion.

Monsieur GODAR

En tant qu'organisateur de cette réunion, je souhaiterais que les participants me fassent part de leurs critiques en vue de la prochaine réunion qui aura lieu en Novembre 1966 à Bruxelles. Dans le plan qui a servi à guider la discussion, je voudrais savoir s'il y a d'autres

points à ajouter, des points que l'on considère comme mineurs et qu'il y aurait lieu de supprimer. Voulez-vous plus de temps consacré aux communications ou bien plus de temps consacré aux discussions ? Enfin j'ai une suggestion à vous proposer c'est de faire publier les communications avant la conférence et de les envoyer aux participants de manière que le temps de la conférence soit uniquement réservé aux discussions sur les papiers.

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

Nous souhaitons, si certains de nos participants trouvent la date de novembre 1966 trop rapprochée, qu'ils veuillent bien le dire. Il me semble, M. GODAR, que cette date et le choix de Bruxelles ne souffre aucune objection. Une des caractéristiques de ces conférences, comme à dit M. GODAR, réside dans le fait qu'il y a très peu de papiers en forme présentés. Comme l'a fait remarquer M. PERKIN, la discussion ouverte présente l'inconvénient d'intercaler des réponses et des questions sur des sujets différents. Peut-être serait il souhaitable de placer les débats dans la forme d'un programme plus structuré, et non pas de travailler sur une liste de questions qui ne sont pas hiérarchisées les unes par rapport aux autres. Je serais heureux que quelqu'un puisse émettre un avis sur cette question.

Monsieur REIFENSCHWEILER

Ich glaube, dass ein Abstand von 1 1/2 - 2 Jahren für diese Arbeitstagungen sehr gut ist. Dass also die nächste Tagung im November nächsten Jahres stattfinden soll, scheint mir ein guter Vorschlag zu sein. Weiterhin scheint mir, dass es nicht zweckmässig ist, vor diesen Arbeitstagungen Preprints

zu verteilen, weil dadurch den Teilnehmern viel mehr Arbeit aufgebürdet wurde, als dies bisher der Fall war. Man muss diese Preprints gut vorbereiten, das ganze muss vielmehr vorher ausgearbeitet werden und meiner Erfahrungen nach, die ich bei anderen Tagungen gemacht habe, erhalten die Teilnehmer die Preprints meistens zu spät. Andererseits halte ich es für eine sehr gute Lösung, Vorträge und Diskussion auf Tonband zu registrieren, und das Protokoll den Teilnehmern frühzeitig zur Korrektur zu übergeben. Ich glaube weiterhin, dass es zweckmässig ist, wenn die Teilnehmer schon sehr früh von dem Stattfinden einer solchen Tagung unterrichtet werden, und das sind wir nun, wir wissen, dass die nächste Tagung im November 1966 stattfinden soll, sodass über sehr viele Themen Vorträge gehalten werden können. Weiterhin scheint mir, dass es auch in Zukunft zweckmässig ist, der freien Diskussion einen besonders grossen Raum zu lassen.

Monsieur MORGAN

I think in general in the working sections for a group of this size there are some that would be quite willing to contribute if it were in a smaller group. I would like to put out for consideration that after the opening sessions for presentation of papers has been held that those attendees which have interests in particular fields divide into small working groups for very intensive discussions.

Monsieur REIFENSCHWEILER

Mir scheint, dass der Verlauf der gegenwärtigen, wie auch der letzten Arbeitstagung in Lüttich gezeigt hat, dass das Hauptinteresse der meisten Teilnehmer auf die Tritiumtargets konzentriert ist. Der grösste Teil der Sitzungen wurden ja diesem Thema gewidmet. Aus diesem Grunde halte ich es für zweckmässig, die Sitzungen getrennt durchzuführen.

Ich persönlich möchte z.B. an sämtlichen Sitzungen teilnehmen, die über Tritiumtargets gehalten werden. Die Tritiumtargets haben sicher doch mindestens 75% der gegenwärtigen Arbeitstagung als auch der Arbeitstagung in Lüttich beschlagnahmt. Darum glaube ich, dass es schwierig ist, getrennte Sitzungen durchzuführen.

Monsieur CHRISTALLER

Wenn Herr REIFENSCHWEILER gestattet, möchte ich ihm etwas widersprechen. Ich glaube, der Grund, warum vornehmlich Tritiumtargets heute und gestern besprochen worden sind, lag daran, dass sie im Programm an erster Stelle waren. Ich würde es sehr begrüßen, als einer der Benutzer einer Hochenergiemaschine, im Vergleich jedenfalls zu anderen Beschleunigern, wenn gerade die Targetherstellung, das Handhaben von Targets und auch Neutronenproduktion und ähnliches von Maschinen, sagen wir, zwischen 2 und 50 oder 100 MeV etwas breiteren Raum einnimmt und wenn vielleicht bei einer zukünftigen Einladung von anderen Labors, wo mit solchen Beschleunigern gearbeitet wird, etwas mehr Leute vielleicht berücksichtigt werden können, sodass wir auch von diesen lernen können, wie sie ihre Targets handhaben, wie sie sie konstruieren und ähnliches.

Monsieur GERBIER - PRESIDENT

De même que M. GODAR a prévu une journée particulière pour l'analyse par activation par particules chargées, je pense que pour la prochaine conférence, il pourra franchement séparer le domaine des très basses énergies et le domaine des machines intermédiaires.

C'est une des leçons à retenir.
